

**Der Einfluß von Strahlenschäden
auf die Beobachtung der gestörten
 γ -Winkelverteilung nach Kernreaktionen in Zink**

von
Wilfried Loeffler

aus
Düsseldorf

1975

**Der Einfluß von Strahlenschäden
auf die Beobachtung der gestörten
 γ -Winkelverteilung nach Kernreaktionen in Zink**

**Den Naturwissenschaftlichen Fachbereichen
der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg**

zur

Erlangung des Doktorgrades

vorgelegt

von

Wilfried Loeffler

aus

Düsseldorf

Als Dissertation genehmigt von den Naturwissenschaftlichen Fachbereichen
der Universität Erlangen-Nürnberg



Tag der mündlichen Prüfung: 26.11.1975

Vorsitzender der Promotionskommission: Prof. Dr. H. Behrens

Erstberichterstatter : Prof. Dr. J. Christiansen

Zweitberichterstatter : Wiss. Rat Dr. G. Ritter

Zusammenfassung

Die Quadrupolwechselwirkung der isomeren $9/2^+$ -Zustände in den Kernen ^{69}Ge und ^{67}Zn wurde mit der Methode der zeitlich differentiellen Beobachtung der gestörten γ -Winkelverteilung nach Kernreaktionen in Zink untersucht. Es wurden Messungen im Temperaturbereich zwischen 12 K und 673 K durchgeführt.

Neben der erwarteten Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten in Zink wurde bei Temperaturen unter etwa 400 K eine Dämpfung der Modulation der Zeitspektren beobachtet. Bei Verwendung der Germanium-Fremdatome tritt außerdem im Gegensatz zur Messung mit Hilfe der ^{67}Zn -Sondenkerne ein signifikanter Abfall der Modulationsamplitude zwischen 450 K und 400 K auf.

Die Dämpfung der Modulation einerseits und die Änderung der Amplitude mit der Temperatur andererseits werden als Auswirkungen der dem Wirtsgitter durch die Rückstoßimplantation der Sondenatome zugefügten Strahlenschäden gedeutet. Die Temperaturabhängigkeit des Einflusses der Strahlenschäden auf die Messungen dient zur Analyse des Erholungsprozesses des Wirtsgitters in der Mikroumgebung der Sondenkerne. Insbesondere wird ein Modell entwickelt, das in quantitativer Weise die Störungen der Ausrichtung der ^{69}Ge -Kerne beschreibt und in der Lage ist, den Unterschied zwischen Messungen an Germanium-Fremdatomen und Zink-Wirtsgitteratomen zu erklären.

Inhaltsverzeichnis

1.	Einleitung	1
2.	Meßmethode	3
3.	Experiment	8
	3.1. Kernphysikalische Daten	8
	3.2. Strahl und Target	9
	3.3. Detektoren und Nachweiselektronik	11
4.	Auswertung und Ergebnisse	14
	4.1. Auswerteverfahren	14
	4.2. Zeitspektren	15
	4.3. Temperaturabhängigkeit der Quadrupolkopplungskonstanten	19
	4.4. Temperaturabhängigkeit der Modulationsamplitude	23
5.	Diskussion der Bestrahlungseffekte	25
	5.1. Abbremsung des Sondenkerns im Gitter	25
	5.2. Diffusionsprozesse in reinen hexagonalen Gittern	30
	5.3. Diffusion in der Umgebung eines Fremdatoms	40
	5.4. Einfluß auf die Ausrichtung der Sondenkerne	46
6.	Schlußbemerkung	53
	Literaturverzeichnis	54

1. Einleitung

Die Untersuchung der durch hochenergetische Teilchen in Festkörpern hervorgerufenen Strahlenschäden ist nicht zuletzt deshalb von praktischem Interesse, weil eine Reihe von Werkstoffen in zunehmendem Maße in großtechnischen Anlagen derartiger Strahlung ausgesetzt ist. Abgesehen von direkter elektronenmikroskopischer Beobachtung, die nur in bestimmten Fällen eine Beantwortung der in diesem Zusammenhang auftretenden Fragestellungen erlaubt, wurden in den letzten Jahren zur Untersuchung der Bestrahlungseffekte in Festkörpern drei Wege eingeschlagen.

Erstens wurde versucht, durch die Verwendung geeigneter Festkörpermodelle entweder rein analytisch oder mit Hilfe rechnergestützter Simulationsverfahren ein Bild über das Ausmaß und die Art der durch die Abbremsung verursachten Störungen eines Gitters zu erhalten (Tho 69).

Zweitens wurde der räumlich und zeitlich integrale Einfluß von Bestrahlungseffekten auf die Eigenschaften einer Probe untersucht (z. B. Schu 70). In diese Kategorie fallen vor allem zahlreiche Experimente zur elektrischen Leitfähigkeit bestrahlter Metalle.

Drittens wurde schließlich mit den Methoden der nuklearen Festkörperphysik die Mikroumgebung von Sondenkernen untersucht, die auf unterschiedliche Art und Weise in ein gestörtes Gitter eingebracht werden (Waa 75, Ber 75). So ist es insbesondere möglich, durch Implantation eines hochenergetischen Sondenatoms lokale Störungen in einem sonst weitgehend idealen Gitter zu beobachten.

Zum bestmöglichen Verständnis der beobachteten Effekte ist es nötig, die Ergebnisse aller Untersuchungsverfahren im Rahmen gemeinsamer, konsistenter Modellvorstellungen zu beschreiben.

Obwohl zahlreiche Einzelresultate vorliegen, scheitert eine derartige Einordnung vieler Experimente der nuklearen Festkörperphysik an der Kompliziertheit der untersuchten Wirtsgitter und der Verschiedenartigkeit der verwendeten Sondenatome. Das gilt insbesondere für die in letzter Zeit häufiger angewandte Methode der Beobachtung der gestörten γ -Winkelverteilung nach Kernreaktionen in Festkörpern (z. B. Scha 69, BerC 70, San 74).

Ziel dieser Arbeit war es deshalb, durch die systematische Untersuchung einfacher Systeme eine möglichst allgemeingültige Beschreibung des Einflusses von Strahlenschäden auf derartige Messungen zu erhalten. Metallisches Zink stellt in zweifacher Hinsicht ein zu diesem Zweck geeignetes Wirtsgitter dar. Einerseits sind seine festkörperphysikalischen Eigenschaften relativ gut bekannt. Andererseits lassen sich ohne die Verwendung komplizierter Mehrschichtentargets durch Beschuß mit Deuteronen, Protonen und α -Teilchen eine Reihe isomerer Zustände in Zn-, Ga- und Ge-Isotopen bevölkern. So kann insbesondere geklärt werden, wie stark die Meßergebnisse davon abhängen, ob die rückstoßimplantierte Sonde ein Fremdatom darstellt oder nicht.

Es wurde deshalb eine vergleichende Messung der Quadrupolwechselwirkung der $9/2^+$ -Zustände in ^{67}Zn und ^{69}Ge bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt. Der dem Zink-Gitter bei der Implantation zugefügte Strahlenschaden macht sich durch Abweichungen von der im idealen Gitter erwarteten Wechselwirkung bemerkbar.

2. Meßmethode

Die Quadrupolwechselwirkung isomerer Kernzustände wurde mit Hilfe der zeitlich differentiellen Beobachtung der gestörten γ -Winkelverteilung nach Kernreaktionen (TDPAD) untersucht. Die formale Behandlung dieses Meßverfahrens schließt sich weitgehend der Theorie der gestörten γ - γ -Winkelkorrelation an, wie sie in der Literatur ausführlich beschrieben wurde (FraS 65). Es sollen deshalb hier nur die Ergebnisse aufgeführt werden, die unmittelbar zum Verständnis der Messung notwendig sind.

Wegen des bei einer Kernreaktion übertragenen Bahndrehimpulses ordnen sich die Spins der Endkerne bevorzugt in einer Ebene senkrecht zur Richtung der einlaufenden Teilchen an. Bezüglich der Einschubrichtung als Quantisierungsachse werden also Unterzustände mit kleiner m-Quantenzahl stärker besetzt. Man bezeichnet die derartige Ausrichtung eines Kernensembles als nukleares Alignment. Für die Winkelverteilung der von einem solchen System emittierten γ -Strahlung gilt:

$$W(\Theta) = \sum_k A_k(x) A_k(\gamma) P_k(\cos \Theta) \quad (1)$$

$$k = 0, 2, 4, \dots, k_{\max}$$

Die P_k stellen die Legendre-Polynome dar; Θ ist der Winkel zwischen der Beobachtungsrichtung und der Strahlachse. Die Koeffizienten $A_k(x)$ beschreiben den Grad der Ausrichtung des zerfallenden Systems. Sie sind meist unbekannt, da der der Kernreaktion zugrundeliegende Mechanismus im allgemeinen nicht hinreichend aufgeklärt ist. Die $A_k(\gamma)$ charakterisieren den elektromagnetischen Übergang und lassen sich aus den beteiligten Spins und Paritäten berechnen (Yam 67). Die Summation läuft bei einem Zustand mit dem Spin I und reiner

γ -Strahlung der Multipolarität L bis $k_{\max} = \min(2I, 2L)$. Für einen gemischten Übergang gilt entsprechend $k_{\max} = \min(2I, L+L')$.

Treten die angeregten Kerne während der Lebensdauer des betrachteten Zustands mit umgebenden elektrischen und magnetischen Feldern in Wechselwirkung, so ändert sich mit der Kernausrichtung auch die Winkelverteilung der beobachteten γ -Strahlung. Für den Fall einer isotropen Verteilung der Richtungen axialsymmetrischer Felder läßt sich das durch die Einführung eines zeitabhängigen Störfaktors in Gleichung (1) berücksichtigen:

$$W(\theta, t) = \sum_k A_k(x) A_k(y) G_{kk}(t) P_k(\cos \theta) \quad (2)$$

Bei der Verwendung polykristalliner Proben liegt eine isotrope Verteilung der Feldrichtungen vor, wenn die Störung der Winkelverteilung durch Kristallfelder bewirkt wird, deren Richtung mit der Achse der einzelnen Mikrokristalle korreliert ist.

In hexagonalen Gittern erwartet man am Kernort jedes Atoms einen axialsymmetrischen elektrischen Feldgradienten e_q , der grundsätzlich durch eine Integration über die Ladungsdichte $\rho(r)$ berechnet werden kann:

$$e_q = \frac{\partial E_z}{\partial z} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \rho(r) \frac{3z^2 - r^2}{r^5} d^3r \quad (3)$$

In Metallen wird allerdings meist der Einfluß der Ionenrümpfe, der Leitungselektronen und der Elektronenhülle des betrachteten Kerns getrennt behandelt (z. B. Heu 75).

Besitzt das isomere Niveau mit dem Spin I ein Quadrupolmoment Q , so wird durch die Wechselwirkung mit dem elektrischen Feldgradienten die Entartung der m -Unterzustände teilweise aufgehoben. Für die Wechselwirkungsenergie gilt:

$$E_m = \frac{3 m^2 - I(I+1)}{4 I(2I-1)} e^2 q Q$$

Man definiert üblicherweise die Quadrupolfrequenz ω_Q :

$$\omega_Q = \frac{e^2 q Q}{4 I(2I-1) \hbar}$$

Der kleinsten nicht verschwindenden Energiedifferenz zweier Unterzustände entspricht bei halbzahligem Spin I die Frequenz

$$\omega_o = 6 \omega_Q$$

Die Größe $V_Q = e^2 q Q / \hbar$ wird als Quadrupolkopplungskonstante bezeichnet.

Im besprochenen Fall eines axialsymmetrischen Feldgradienten in einer polykristallinen Probe läßt sich der Einfluß der Quadrupolwechselwirkung auf die Winkelverteilung der γ -Strahlung durch den Störfaktor

$$G_{kk}(t) = \sum_n s_{kn} \cos(n\omega_o t) \quad (4)$$

beschreiben. Der Summationsindex durchläuft bei halbzahligem Spin für alle möglichen Paare von m -Quantenzahlen die Werte

$$n = \frac{1}{2} |m^2 - m'^2| \quad (5)$$

einschließlich der Null. Bei der Berechnung der Koeffizienten s_{kn} ist dann

über alle m und m' zu summieren, deren Differenz gemäß (5) zu dem gleichen n führt:

$$s_{kn} = \sum_{m, m'} \left(\begin{array}{ccc} I & I & k \\ m' & -m & m-m' \end{array} \right)^2$$

Die bisherige Behandlung der Quadrupolwechselwirkung setzte voraus, daß der Feldgradient am Ort eines jeden betrachteten Korns identisch ist. Das wird jedoch insbesondere dann nicht zutreffen, wenn der Untersuchung eine Kernreaktion mit nachfolgender Rückstoßimplantation des Sondenatoms vorausgeht. Wie später noch näher erläutert wird, ist in diesem Fall in der Regel mit einer mehr oder weniger starken Störung der Gittersymmetrie in der Umgebung des gestoppten Rückstoßatoms zu rechnen. Es treten von Sondenkern zu Sondenkern verschiedene Feldgradienten auf, was durch die Einführung einer Verteilung der Wechselwirkungsfrequenz $P(\omega)$ berücksichtigt werden kann. Die Berechnung dieser Verteilung erfordert jedoch eine genaue Kenntniss aller vorkommenden Gitterstörungen mit der Häufigkeit ihres Auftretens. Da hiervon normalerweise nicht ausgegangen werden kann, versucht man die Meßergebnisse durch einfache statistische Ansätze für $P(\omega)$ zu erklären. Das Maß der dabei erzielten Übereinstimmung läßt dann Rückschlüsse auf die Richtigkeit der Ansätze zu. Bei einem nicht zu stark gestörten Gitter erscheint es sinnvoll, eine Normalverteilung um die Frequenz ω_0 im idealen Gitter mit der Streuung δ anzunehmen:

$$P(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \delta} e^{-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{2\delta^2}} \quad (6)$$

Unter der Voraussetzung, daß die Feldgradienten der leicht gestörten Konfiguration in erster Näherung noch axiale Symmetrie besitzen, ist die Integration von (4) möglich. Man erhält als frequenzgewichteten Störfaktor:

$$G_{kk}(t) = \sum_n s_{kn} e^{-\frac{1}{2}(n\delta t)^2} \cos(n\omega_0 t) \quad (7)$$

Die Halbwertsbreite der entsprechenden Verteilung der Quadrupolkopplungskonstanten ν_Q ergibt sich bei halbzahligem Spin I zu:

$$\Delta \nu_Q = \frac{2I(2I-1)}{3\pi} \sqrt{2\ln 2} \delta$$

3. Experiment

3.1. Kernphysikalische Daten

Wie Fig. 1 zeigt, weisen die Niveauschemata der Isotone ^{67}Zn und ^{69}Ge im Bereich der ersten vier angeregten Zustände starke Ähnlichkeit auf. In beiden Kernen lassen sich die bekannten Spins und Paritäten durch Anregungen der $1f_{5/2^-}$ und $2p_{3/2^-}$ -Neutronen erklären. Die isomeren $9/2^+$ -Niveaus zerfallen durch gemischte M2-E3-Übergänge direkt in den jeweiligen Grundzustand. Ein Vergleich der g-Faktoren dieser Zustände unterstreicht die Analogie zwischen den beiden untersuchten Kernen zusätzlich (BerL 73, ChrM 70).

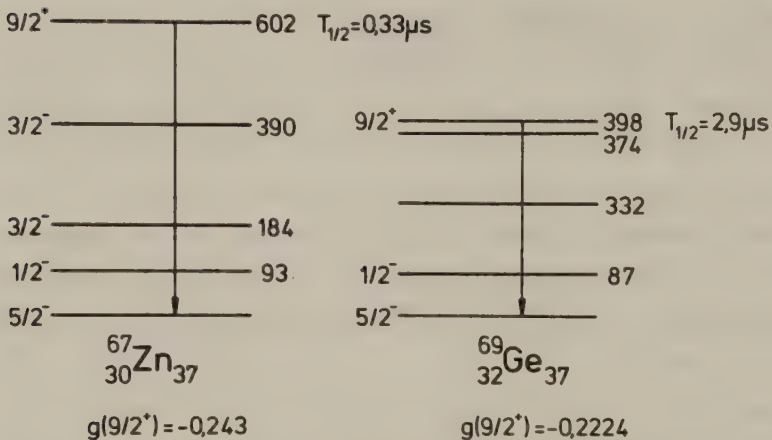


Abb. 1 Ausschnitte der Niveauschemata der verwendeten Sondenkerne
(EhrS 67, BerL 73, Man 68)

3.2. Strahl und Target

Das Prinzip der zeitlich differentiellen Beobachtung der Hyperfeinwechselwirkung setzt eine eindeutige Beziehung zwischen dem Zeitpunkt der Anregung und Ausrichtung der isomeren Niveaus und des Nachweises der emittierten γ -Strahlung voraus. Man kann dies durch Pulsung des verwendeten Teilchenstrahls mit einer Wiederholzeit erreichen, die groß im Vergleich zur Lebensdauer des betrachteten Zustands ist. Die Pulsbreite bestimmt in der Regel die Zeitauflösung der Messung und muß sich nach den auftretenden Wechselwirkungsfrequenzen richten.

Kernreaktion	Teilchenenergie	Targetstrom	Pulsabstand	Pulsbreite
$^{66}\text{Zn}(d,p)^{67}\text{Zn}$	$E_d = 7 \text{ MeV}$	10 nA	2 μs	15 ns
$^{66}\text{Zn}(\alpha,n)^{69}\text{Ge}$	$E_\alpha = 15 \text{ MeV}$	1,5 nA	8 μs	15 ns

Tab. 1 Kernreaktionen und charakteristische Daten des Teilchenstrahls

Das externe Pulsungssystem des Erlanger Tandembeschleunigers (JaeR 69) wurde derart modifiziert, daß bei einer Wiederholzeit von 500 ns eine minimale Pulsbreite von 10 ns erreicht werden kann. Ein zusätzlicher Rechteck-Hochspannungsgenerator erlaubt es mit Hilfe eines Ablenkplattenpaares jeweils einen oder mehrere Teilchenstrahlimpulse zu unterdrücken, wodurch eine beliebige Vervielfachung des Pulsabstands möglich wird. Tab 1 gibt

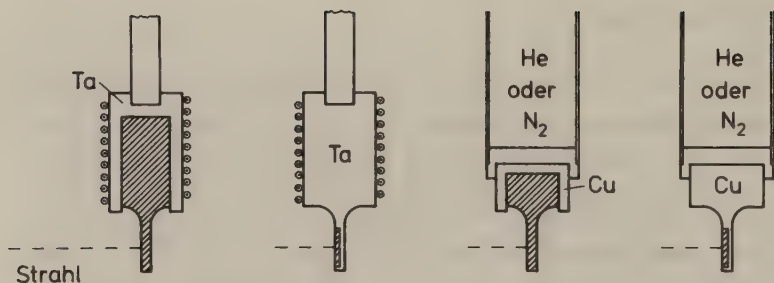


Abb. 2 Targethalterungen mit Heiz- bzw. Kühlvorrichtungen

einen Überblick über die zur Bevölkering der $9/2^+$ -Zustände verwendeten Kernreaktionen, sowie über die Teilchenenergien, mittleren Strahlstromstärken und Pulsungsverhältnisse. Um störende Konkurrenzreaktionen auszuschalten, erwies es sich als notwendig, für die $^{66}\text{Zn}(d,p)^{67}\text{Zn}$ -Reaktion ein angereichertes Target zu benutzen (Anreicherungsgrad 97%, chemische Reinheit 99,98%). Zur Untersuchung des ^{69}Ge nach der (α,n) -Reaktion genügte Targetmaterial mit der natürlichen Isotopenzusammensetzung (chemische Reinheit 99,9985%).

Abb. 2 zeigt eine Schnittzeichnung der verschiedenen Anordnungen zur Halterung der Targets und zur Einstellung der gewünschten Temperatur. Die schraffierten Bereiche stellen das jeweilige Targetmaterial dar. Die flachen Bohrungen in den massiven Haltern dienten vorzugsweise der Aufnahme des angereicherten Zinks. Für Messungen über 300 K wurden heizbare Halterungen aus Tantal verwendet, das mit Zink nicht legiert. Die Heizwicklungen bestanden aus speziellem, koaxial isoliertem Draht (Thermokoax Typ 1 NC 10 der Firma Philips). Um die Absorption der unter Vorwärtswinkeln emittierten γ -Strahlung gering zu halten, wurden die Targetkörper am bestrahlten Ende

auf eine Stärke von 2 mm abgefräßt. Zur Temperaturkontrolle dienten Thermo-elemente, die in Bohrungen entweder direkt im Target- oder im Haltermaterial angebracht waren. Aus einem Vergleich der Anzeigen unterschiedlich platzierter Thermo-elemente erhält man eine Genauigkeit von ± 5 K für diese Art der Temperaturmessung.

Wegen der besseren Wärmeleitfähigkeit wurde für Messungen am Kryostaten ein Targethalter aus Kupfer verwendet, der auf das Ende eines kühlmittelgefüllten Stahlkörpers gelötet war. Zur Messung der erreichten Temperatur diente bei dieser Anordnung neben einem Thermo-element die Widerstandsänderung eines mit dem Target verbundenen Kohleschichtwiderstands. Die zugehörige Eichung wurde der Arbeit von Kröniger entnommen (Krö 70).

Die weder mit Helium- noch mit Stickstofffüllung direkt erreichbaren Temperaturpunkte zwischen 77 K und 300 K wurden durch differentielle Kühlung eines beheizbaren Kupferfingers eingestellt.

Alle Targethalter waren so konstruiert, daß sie entweder am Kryostaten von oben oder von unten in ein T-förmiges Glasrohr geschoben werden konnten, das den Abschluß des Strahlrohrsystems des Beschleunigers bildete. Um bei höheren Temperaturen ein Abdampfen des Targetmaterials zu verhindern, konnte das Glasrohr mit Hilfe eines Strahleintrittsfensters aus $2,7 \mu\text{m}$ starker Havarfolie vom Beschleunigervakuum abgetrennt und mit Edelgas gefüllt werden.

3.3 Detektoren und Nachweiselektronik

Wegen der Multipolordnung der in ^{67}Zn und ^{69}Ge beobachteten Übergänge tragen zur Anisotropie der γ -Strahlung entsprechend Gleichung (1) höchstens Terme proportional zu den Legendre-Polynomen $P_2(\cos\Theta)$ und $P_4(\cos\Theta)$ bei.

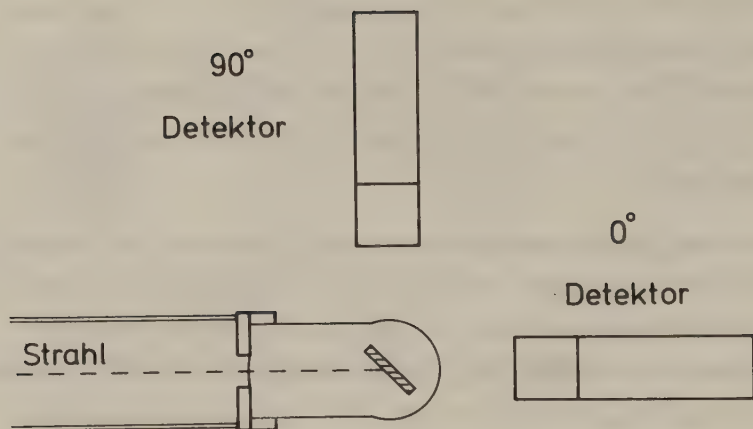


Abb. 3 Anordnung des Targets und der Detektoren

Bei beiden Kernen ist mit einem Überwiegen des ersten Terms zu rechnen (BerL 73, Haal 73). Man erhält deshalb maximale Intensitätsdifferenz zwischen Detektoren, die unter 0° und 90° zur Richtung des einlaufenden Teilchenstrahls aufgestellt sind. Abb. 3 zeigt die verwendete Anordnung.

Zum Nachweis sowohl der 398 keV- als auch der 602 keV- γ -Strahlung wurden $1\frac{1}{2}$ " dicke NaJ(Tl)-Kristalle mit einem Durchmesser von ebenfalls $1\frac{1}{2}$ " benutzt. Photomultiplier des Typs 56DVP03 (Firma Valvo) waren unmittelbar mit den Szintillatorkristallen verbunden und durch Abschirmungen aus hochpermeablem Metall gegen Einflüsse des Erdmagnetfelds geschützt.

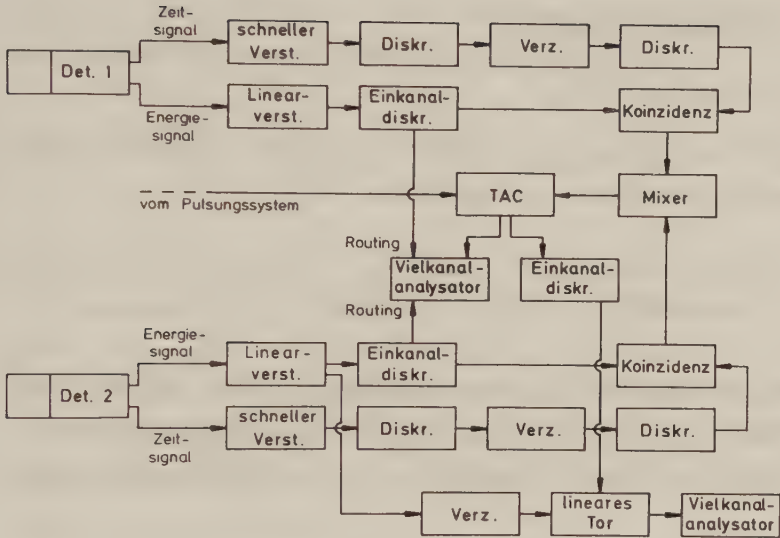


Abb. 4 Blocksaltbild der MeBelektronik

In Abb. 4 ist ein Blocksaltbild der nachfolgenden Elektronik dargestellt, die eine gleichzeitige Aufnahme der Zeitspektren und Kontrolle der eingestellten γ -Energiediskriminierung ermöglichte. Eine ausführliche Funktionsbeschreibung befindet sich in der Referenz Loe 72.

4. Auswertung und Ergebnisse

4.1. Auswerteverfahren

Für die Intensität der im Detektor nachgewiesenen γ -Strahlung erwartet man nach einer Korrektur auf Untergrund:

$$N(\theta, t) = N_0 e^{-\frac{t}{\tau_N}} W(\theta, t)$$

Dabei berücksichtigt die Exponentialfunktion den Zerfall des untersuchten Niveaus mit der Lebensdauer τ_N . $W(\theta, t)$ stellt die Winkelverteilung der beobachteten $9/2^+ \rightarrow 5/2^-$ Übergänge dar und hat gemäß Gleichung (2) die Form:

$$W(\theta, t) = 1 + A_{22} G_{22}(t) P_2(\cos\theta) + A_{44} G_{44}(t) P_4(\cos\theta)$$

A_{kk} ist das Produkt der Anisotropiekoeffizienten $A_k(x)$ und $A_k(\gamma)$.

Zur Auswertung der Zeitspektren wurde das folgende Zählratenverhältnis gebildet:

$$\begin{aligned} R(t) &= 2 \frac{N(0^\circ, t) - N(90^\circ, t)}{N(0^\circ, t) + 2 N(90^\circ, t)} \\ &= \frac{3 A_{22} G_{22}(t) + \frac{5}{4} A_{44} G_{44}(t)}{3 + \frac{7}{4} A_{44} G_{44}(t)} \end{aligned} \quad (8)$$

Es stellte sich heraus, daß der zeitliche Verlauf der Spektren in den vorliegenden Fällen ohne Berücksichtigung des kleinen A_{44} -Terms gut wieder-

gegeben werden kann. Bei der weiteren Auswertung wurde deshalb dieser Term vernachlässigt. Man erhält so unter Verwendung von Gleichung (7):

$$R(t) \approx A_{22} \sum_n s_{2n} e^{-\frac{1}{2}(n\delta t)^2} \cos(n\omega_0 t) \quad (9)$$

Diese Funktion wurde mit Hilfe der Methode der kleinsten Fehlerquadrate an die experimentellen Daten angepaßt. A_{22} und ω_0 waren freie Parameter. Die Streuung der Frequenzverteilung konnte entweder mitvariiert oder konstant gleich Null gesetzt werden (JohK 74). Eine Korrektur der angepaßten Funktion auf die durch die Breite der Teilchenstrahlimpulse verursachte endliche Zeitauflösung der Messung erfolgte durch Einfügen des zusätzlichen, zeitunabhängigen Abschwächungsfaktors:

$$e^{-\frac{1}{2}(n\omega_0\sigma)^2}$$

σ ist die Streuung des gaußförmig angenommenen zeitlichen Strahlprofils.

4.2. Zeitspektren

In Abb. 5 ist die zeitliche Modulation $R(t)$ der Intensität der 398 keV γ -Strahlung in Folge der Quadrupolwechselwirkung des $^{69}\text{Ge-}9/2^+$ -Zustands für drei Temperaturen des Zink-Wirtsgitters dargestellt. Die durchgezogenen Linien zeigen Anpassungen der Funktion (9) unter Berücksichtigung der endlichen Zeitauflösung.

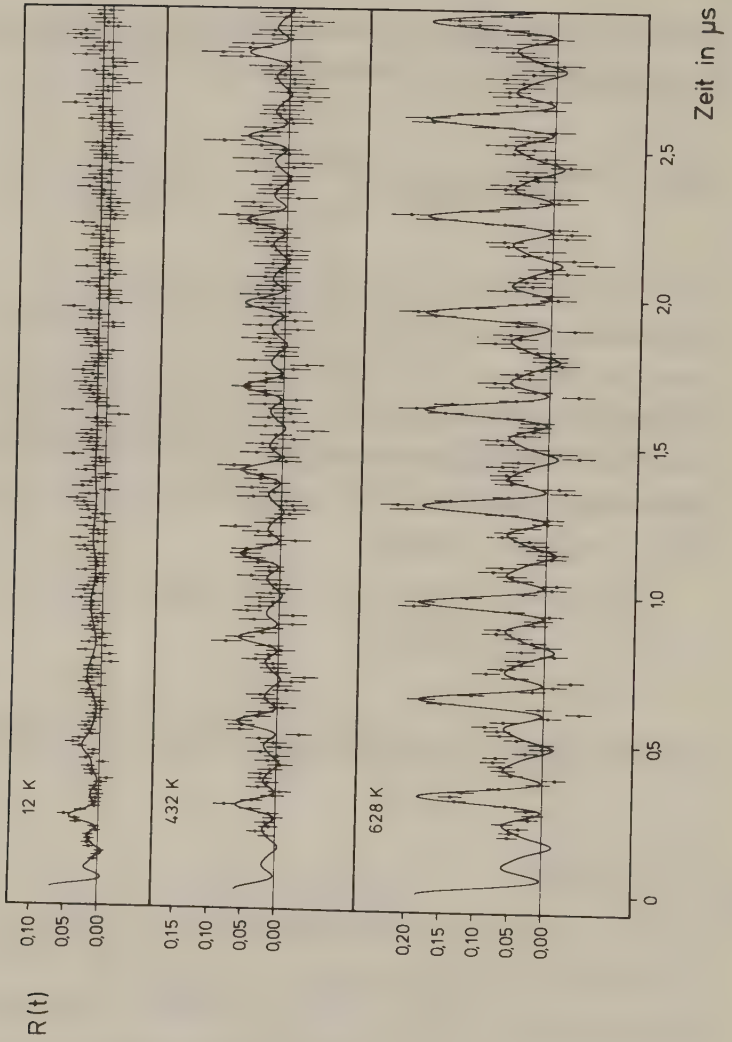


Abb. 5 Quadrupolwechselwirkung des $^{69}\text{Ge}-9/2^+$ -Zustands in Zink

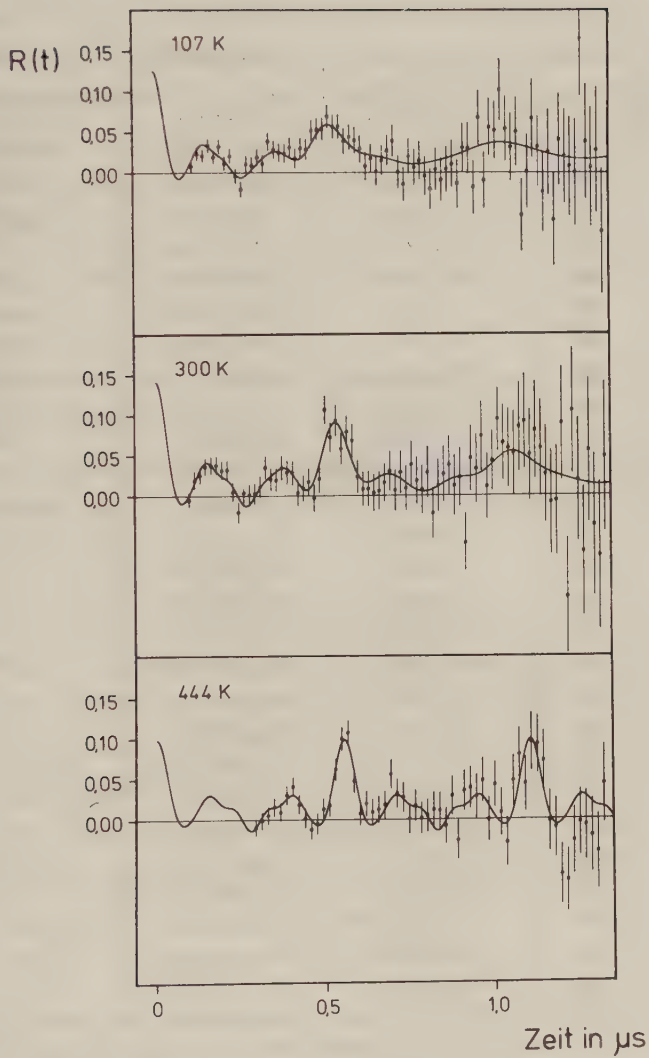


Abb. 6 Quadrupolwechselwirkung des $^{67}\text{Zn-9/2}^+$ -Zustands in Zink

	T in K	A ₂₂ in %	V _Q in MHz	ΔV _Q in MHz
⁶⁷ Zn in Zink	107	12,3 ± 1,3	46,7 ± 0,6	9,4 ± 2,8
	173	12,6 ± 2,3	45,7 ± 1,1	12,9 ± 6,2
	211	14,7 ± 2,0	46,7 ± 0,8	10,3 ± 3,3
	300	14,2 ± 1,5	45,6 ± 0,5	6,2 ± 2,2
	303	11,3 ± 1,2	45,8 ± 0,3	4,1 ± 1,9
	340	13,2 ± 1,6	45,1 ± 0,4	5,6 ± 2,5
	368	12,5 ± 0,8	44,4 ± 0,3	1,8 ± 1,7
	382	12,5 ± 1,2	44,2 ± 0,3	4,0 ± 2,2
	426	11,5 ± 1,3	43,5 ± 0,3	1,8 ± 2,9
	444	11,3 ± 1,0	43,6 ± 0,3	0,0 ± 2,2
	507	12,0 ± 0,8	42,0 ± 0,2	0,0 ± 1,5
⁶⁹ Ge in Zink	12	7,0 ± 1,2	101,1 ± 1,1	14,5 ± 5,2
	77	7,7 ± 4,2	99,1 ± 3,1	23 ± 20
	374	1,5 ± 0,7	88,24 ± 0,65	0
	432	6,9 ± 0,8	84,95 ± 0,27	0
	441	9,3 ± 1,3	84,34 ± 0,31	0
	457	14,1 ± 1,3	83,58 ± 0,15	0
	478	13,2 ± 0,9	82,58 ± 0,15	0
	498	13,9 ± 1,5	81,59 ± 0,11	0
	529	20,1 ± 2,7	79,72 ± 0,19	0
	565	15,3 ± 1,6	77,65 ± 0,15	0
	570	16,9 ± 2,0	77,27 ± 0,15	0
	599	16,9 ± 1,3	75,32 ± 0,15	0
	628	21,2 ± 1,3	73,80 ± 0,23	0
	649	16,8 ± 1,3	72,46 ± 0,15	0
	654	20,1 ± 1,1	72,35 ± 0,15	0
	673	13,6 ± 0,9	71,12 ± 0,23	0

Tab. 2 Zusammenstellung der experimentellen Ergebnisse. Die Fehler beinhalten die statistische Unsicherheit sowie Ungenauigkeiten der Zeit-
eichung. Die Temperaturangaben sind, wie im Text erläutert, mit
einem Fehler von maximal 5 K behaftet.

Die bei 12 K beobachtete Frequenzverteilung entspricht dem Auftreten einer Reihe verschiedener elektrischer Feldgradienten, was sich als Folge einer Störung des Wirtsgitters in der Umgebung der Germanium-Atome deuten läßt. Bei höheren Temperaturen unterliegen die Sondenkerne im Gegensatz hierzu offenbar nur der Wechselwirkung mit einem einheitlichen Feldgradienten. Es zeigt sich jedoch ein signifikanter Abfall der Modulationsamplitude von hohen zu tiefen Temperaturen.

Für ebenfalls drei der untersuchten Temperaturpunkte zeigt Abb. 6 die Quadrupolwechselwirkung des $^{67}\text{Zn-9/2}^+$ -Zustands im gleichen Wirtsgitter. Die eingezeichneten Kurven stellen Anpassungen der für eine gaußförmige Verteilung der Wechselwirkungsfrequenzen bei axialsymmetrischen Feldgradienten erwarteten Modulationsfunktion (9) dar.

Die Resultate der Auswertung aller Messungen sind in Tab. 2 zusammengestellt. Die eingetragenen Amplitudenwerte wurden auf den Einfluß der endlichen Zeitauflösung korrigiert und auf Grund der Anpassung von Gleichung (9) auf den Zeitpunkt $t=0$ der Anregung extrapoliert. Enthält die letzte Spalte der Tabelle keine Fehlerangabe, so wurde bei der Anpassung der Modulationsfunktion an die Zeitspektren ΔV_Q konstant gleich Null gesetzt, da keine signifikante Abweichung von der für einen einheitlichen Feldgradienten erwarteten Modulation festgestellt werden konnte.

4.3. Temperaturabhängigkeit der Quadrupolkopplungskonstanten

Wie empirisch gezeigt wurde, läßt sich die Temperaturabhängigkeit der Quadrupolkopplungskonstanten in einer Reihe von Metallen durch die folgende

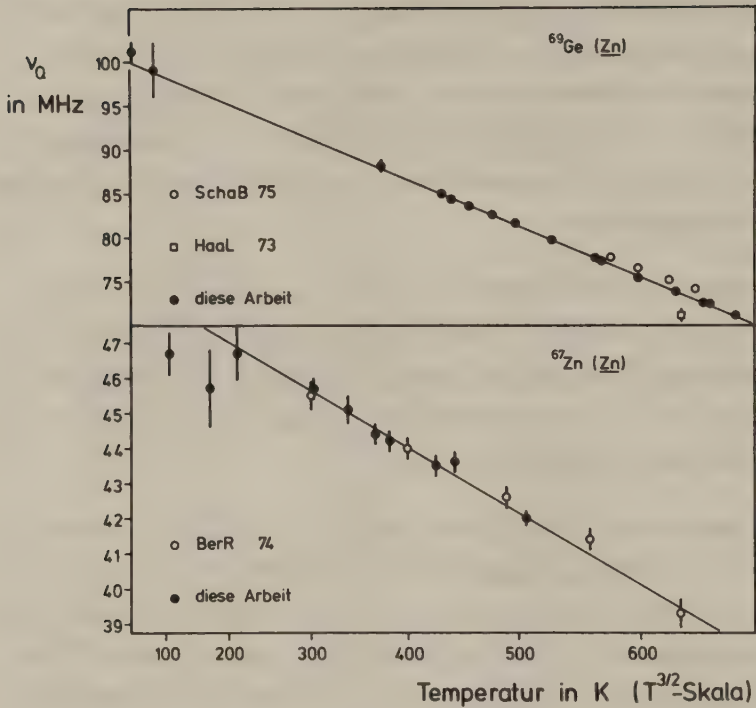


Abb. 7 Quadrupolwechselwirkungsfrequenzen in Abhängigkeit von $T^{3/2}$

Beziehung beschreiben (HeuH 74):

$$\nu_Q = A + B T^{3/2} \quad (10)$$

Eine Erklärung dieser Gesetzmäßigkeit auf der Basis einer Wechselwirkung zwischen den Quadrupolmomenten der Elektronenhüllen benachbarter Atome wird

zur Zeit erarbeitet (Heu 75). Abb. 7 zeigt eine entsprechende Auftragung der beobachteten Quadrupolkopplungskonstanten über $T^{3/2}$. Zu Vergleichszwecken wurden die Ergebnisse anderer Autoren ebenfalls eingezeichnet (SchaB 75, Haal 73, BerR 74). Eine signifikante Abweichung außerhalb der Ungenauigkeit der Zeiteichung und Temperaturmessung zeigt nur der Wert von Haas und Mitarbeitern.

Die abgebildeten Geraden stellen Anpassungen von Gleichung (10) an die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit dar. Dabei wurden Meßpunkte unter 200 K nicht berücksichtigt, um eine Verfälschung durch den in diesem Temperaturbereich verstärkten Einfluß von Strahlenschäden zu vermeiden.

Eine Berechnung des Verhältnisses der Quadrupolmomente der analogen $9/2^+$ -Zustände in ^{67}Zn und ^{69}Ge aus einem Vergleich der Meßwerte ist nicht ohne weiteres möglich, da weder bei einem reinen Metall noch in einem implantierten Fremdatom die Beiträge der Hüllen- und Leitungselektronen zum Feldgradienten am Kernort hinreichend bekannt sind. Zu einer groben Abschätzung können jedoch die für freie Zn^{2+} - und Ge^{4+} -Ionen berechneten Sternheimerfaktoren herangezogen werden (Feij 69). Man erhält so unter Vernachlässigung des Einflusses der Leitungselektronen $Q(^{69}\text{Ge})/Q(^{67}\text{Zn}) = 2,9$. Im Gegensatz hierzu liefern auf ähnlichem Wege durchgeführte Abschätzungen der Quadrupolmomente der beiden $9/2^+$ -Zustände nahezu gleiche Absolutwerte von etwa 0,2 b (Haal 73, BerR 74). Die erhebliche Abweichung des angegebenen Verhältnisses vom Wert 1 gibt einen Eindruck von der Ungenauigkeit derartiger Vergleichsverfahren und der mit ihrer Hilfe abgeschätzten Werte für Quadrupolmomente und Feldgradienten.

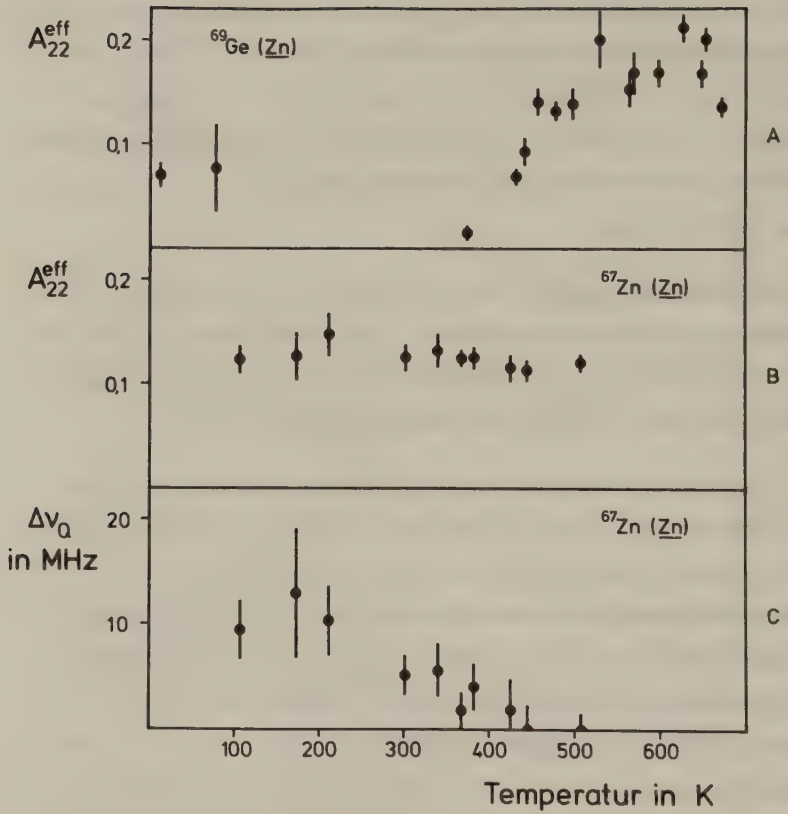


Abb. 8 Temperaturabhängigkeit der Modulationsamplituden (A,B) und der Breite der angepaßten Frequenzverteilungen (C). Die Amplitudenwerte wurden auf den Zeitpunkt der Anregung $t=0$ extrapoliert und sind auf den Einfluß der endlichen Zeitauflösung der Messung korrigiert.

4.4. Temperaturabhängigkeit der Modulationsamplitude

In Abb. 8 sind die beobachteten Modulationsamplituden und die Halbwertsbreiten ΔV_Q der Verteilungen der Quadrupolkopplungskonstanten V_Q über der Temperatur aufgetragen. Die eingezeichneten Werte entsprechen der Aufstellung in Tab. 2.

Während die Untersuchung von ^{67}Zn in Zink eine über den gesamten Temperaturbereich konstante Modulationsamplitude zeigt, erhält man nach der Implantation der ^{69}Ge -Fremdatome in das gleiche Wirtsgitter einen steilen Abfall dieser Größe zwischen 450 K und 400 K. Unterhalb dieses Temperaturbereichs konnte für das System ^{69}Ge in Zink nur bei 77 K und 12 K eine schwache Modulation der Zeitspektren festgestellt werden, die jedoch durch die bei tiefen Temperaturen beobachtete Verbreiterung der Frequenzverteilung innerhalb kurzer Zeit ausgeschmiert wird.

Die Ergebnisse der von Bertschat und Mitarbeitern an ^{67}Zn in Zink durchgeführten Untersuchung (BerR 74) wurden in Abb. 8 nicht eingetragen, da bei der Auswertung dieser Messungen der Einfluß einer Frequenzverteilung nicht berücksichtigt wurde. Ein direkter Vergleich mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit ist deshalb nur für Temperaturen über etwa 400 K möglich, wenn die relative Breite der beobachteten Verteilung vernachlässigbar ist. In diesem Bereich stimmen beide Messungen überein.

Aus den gleichen Gründen ist eine kürzlich von Bartsch und Mitarbeitern am System ^{67}Ge in Zink vorgenommene Untersuchung (BarL 75) nur bedingt mit den Messungen an ^{69}Ge vergleichbar. Wegen der relativ zur Periode der Quadrupolwechselwirkung (≈ 250 ns) kurzen Lebensdauer des $9/2^+$ -Zustands in ^{67}Ge ($T_{1/2} = 70$ ns) ist dieser Sondenkern auf Veränderungen der Gitter-

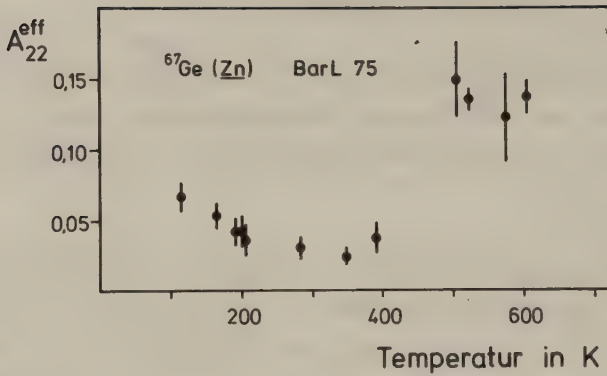


Abb. 9 Modulationsamplituden der Zeitspektren auf Grund der Quadrupolwechselwirkung des $^{67}\text{Ge}-9/2^+$ -Zustands in Zink nach einer Messung von Bartsch und Mitarbeitern (BarL 75).

symmetrie in Folge von Strahlenschäden entsprechend unempfindlich und es bereitet Schwierigkeiten bei der Auswertung die unterschiedlichen Auswirkungen auf die Zeitspektren klar zu trennen. Abb. 9 zeigt das Ergebnis einer Auswertung von Bartsch und Mitarbeitern, bei der der Einfluß einer Dämpfung der Zeitspektren in Folge einer Verteilung der Wechselwirkungsfrequenzen unberücksichtigt blieb. Die aufgetragenen Amplituden stellen deshalb insbesondere im Bereich tiefer Temperaturen Mittelwerte über die im Anpassungsintervall beobachtete Modulation dar.

5. Diskussion der Bestrahlungseffekte

Im folgenden soll eine möglichst allgemeingültige Beschreibung des Einflusses von Strahlenschäden auf Messungen der gestörten γ -Winkelverteilung nach Kernreaktionen gegeben werden. Es wird dazu untersucht, wie sich die bekannten Vorstellungen zur Entstehung und Ausheilung von Strahlenschäden in Metallen mit den Ergebnissen dieser Messungen vereinbaren lassen und auf welche Vorgänge derartige Experimente besonders empfindlich sind. Insbesondere wird ein mikroskopisches Modell entwickelt, das es gestattet, das unterschiedliche Verhalten nach der Implantation eines Wirtsgitter- und Fremdatoms zu erklären.

5.1. Abbremsung des Sondenkerns im Gitter

Abhängig von Richtung und Energie der Reaktionsprodukte wird bei den in Tab. 1 beschriebenen Kernreaktionen auf die angeregten Kerne eine Rückstoßenergie zwischen etwa 200 keV und 1 MeV übertragen. Bei der Verwendung homogener, dicker Targets findet die Abbremsung der Rückstoßatome auf thermische Energie noch innerhalb des Targetmaterials statt. Die Dynamik dieses Abbremsprozesses in Metallen war Gegenstand sowohl zahlreicher Simulationsrechnungen (Bee 66, ErgV 64, ErgV 65) als auch eingehender Untersuchungen mit Hilfe rein analytischer Berechnungsverfahren (Lei 65). Mit letzteren ist es im allgemeinen jedoch nur möglich, Aussagen über zeitliche und räumliche Mittelwerte der interessierenden Größen zu machen. Zur Interpretation der sehr selektiven Meßgrößen der nuklearen Festkörperphysik erscheinen deshalb die Simulationsergebnisse geeigneter.

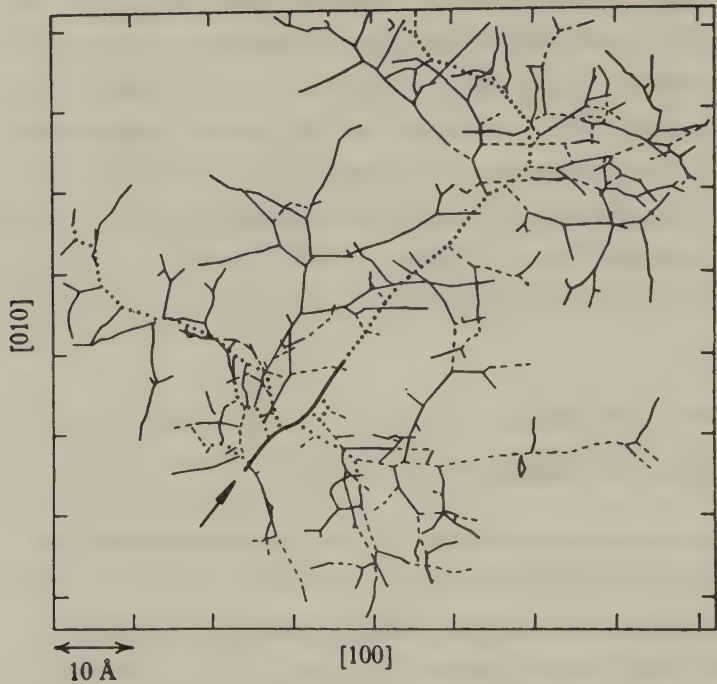


Abb. 10A Projektion einer durch ein 5 keV-Teilchen ausgelösten Kollisionskaskade in Eisen auf die (001)-Ebene. Die dick ausgezogene Linie zeigt die Spur des primären Ions, die dick gepunkteten die der sekundären Teilchen. Danach beschreiben abwechselnd durchgezogene und gestrichelte Linien die Spuren in höherer Ordnung angestoßener Teilchen (Tho 69).

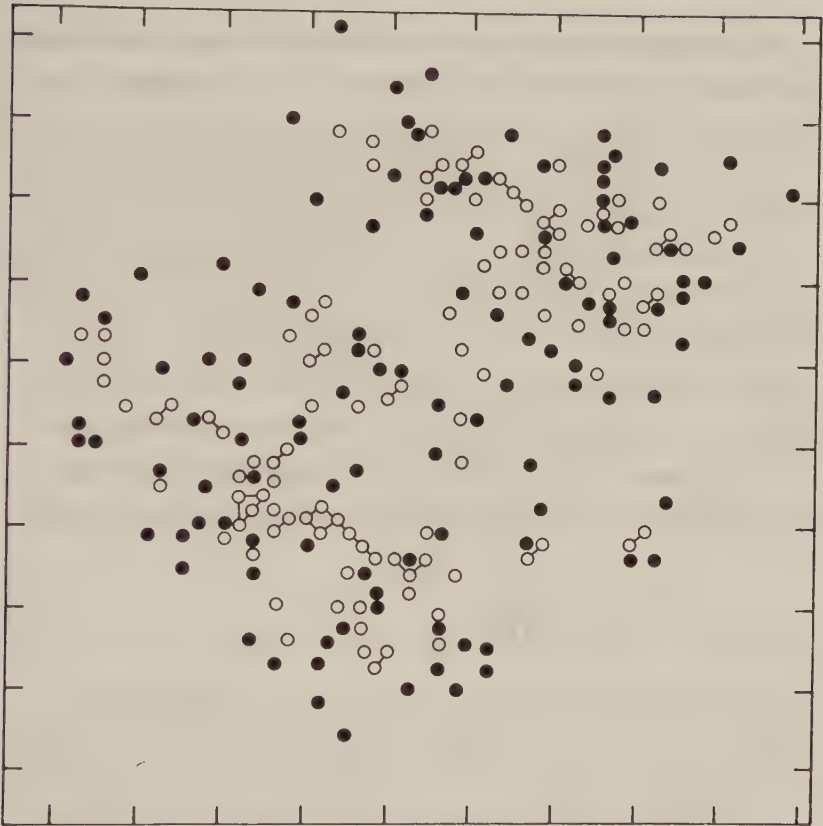


Abb. 10B Von der beschriebenen Kaskade produzierte Defekte. Ausgefüllte Punkte entsprechen Zwischengitteratomen, offene Kreise Leerstellen (Tho 69).

Die Abbremsung hochenergetischer Ionen in einem Festkörper erfolgt zuerst überwiegend durch Ionisation der Gitteratome. Erst bei einer Energie, die im Zink-Gitter bei etwa 60 keV liegt, treten die Ionisationsverluste allmählich in den Hintergrund, und die weitere Abbremsung kann durch elastische Stöße mit den Gitteratomen beschrieben werden. Eine Versetzung von Gitteratomen ist nur durch Stöße möglich, bei denen die übertragene Energie eine richtungsabhängige Schwelle E_d überschreitet. Maury und Mitarbeiter erhalten in Zink für E_d Werte zwischen 14 eV und über 55 eV (MauV 73). Da bei Stößen des primären Rückstoßatoms jedoch meistens weitaus höhere Energien übertragen werden, sind die angestoßenen Atome ebenfalls in der Lage weitere Defekte zu erzeugen, was zur Ausbildung einer Kollisionskaskade führt. Die Gesamtzahl der Frenkel-Paare pro Primäratom mit der Energie E_p läßt sich durch

$$N = \frac{E_p}{2 \overline{E_d}} \quad (11)$$

näherungsweise berechnen (Lei 65). Schätzt man für eine polykristalline Probe den über alle Richtungen gemittelten Wert des zur Versetzung notwendigen Energieübertrags mit $\overline{E_d} = 50$ eV ab, so erhält man unter Berücksichtigung der Ionisationsverluste mit $E_p = 60$ keV etwa 600 Frenkel-Paare nach jeder Kernreaktion. Abb. 10 zeigt die mit Hilfe einer Simulationsrechnung erhaltene Struktur einer derartigen Kaskade.

Aus einer Vielzahl simulierter Abbremsprozesse in kubischen Gittern ergibt sich, daß das Primäratom - zumindest wenn sich seine Masse nicht wesentlich von der der Gitteratome unterscheidet - mit großer Wahrscheinlichkeit durch einen Ersetzungsstoß auf einem normalen Gitterplatz zur Ruhe kommt. In seiner Nähe befinden sich vielfach Leerstellen, während die zugehörigen Zwischen-

gitteratome auf Grund fokussierter Stoßfolgen meist in größerem Abstand erzeugt werden.

Dieses Bild wurde durch Untersuchungen des Mößbauereffekts nach Kernreaktionen weitgehend bestätigt (CzjB 70, ChrH 67). Der größte Teil der Mößbaueratome erreicht offensichtlich einen normalen Gitterplatz. Das Ausmaß und die Art der Störung in der Umgebung hängt jedoch sowohl vom spezifischen Wirtsgitter und Sondenatom, als auch von weiteren experimentellen Parametern ab (JacH 70, PreG 71).

Wegen des hohen Energieübertrags auf das Gitter im Bereich der Kollisionskaskade erreichen auch nicht direkt beteiligte Atome in diesem Gebiet für etwa 10^{-12} s eine kinetische Energie, die Temperaturen bis zu einigen tausend Kelvin entspricht (Sig 74). Es ist deshalb kurzfristig quasithermische Diffusion von Gitterdefekten möglich, auch wenn diese nach Erreichen des thermischen Gleichgewichts weitgehend unbeweglich sind. Unmittelbar nachdem ein Rückstoßatom gestoppt ist, muß also noch mit Veränderungen der Konfiguration des Gitters in seiner Umgebung gerechnet werden. Das gilt insbesondere dann, wenn wegen einer attraktiven Wechselwirkung zwischen implantierten Fremdatomen und Gitterdefekten Einfangprozesse auftreten können.

Für die folgenden Überlegungen zur Diffusionserholung einer Defektkaskade ist eine Abschätzung des maximal möglichen integralen Strahlenschadens im Target von Nutzen. Hierzu wurde die Zahl der durch Kernreaktionen verursachten Defekte mit Gleichung (11) berechnet. Die Anzahl der zusätzlich, unmittelbar durch den Teilchenstrahl erzeugten Defekte wurde nach Thompson abgeschätzt (Tho 69). Für eine Bestrahlungszeit von 300 h mit den in Tab. 1 angegebenen Strömen erhält man so ohne Berücksichtigung möglicher Erholung eine maximale Defektkonzentration von 10^{-4} innerhalb des vom Strahl erreichten Targetvolumens.

Die Annahme, daß außerhalb der jeweils produzierten Kaskade ein weitgehend ungestörtes Gitter vorliegt, erscheint somit gerechtfertigt.

5.2. Diffusionsprozesse in reinen hexagonalen Gittern

Eine Ausheilung der durch die Abbremsung der Rückstoßatome in Metallen verursachten Strahlenschäden ist im allgemeinen nur auf Grund thermisch aktivierter Bewegungsvorgänge der produzierten Defekte möglich. Da die Selbstdiffusion in Metallen in der Regel über einen Leerstellenmechanismus abläuft, lassen sich aus derartigen Messungen Aussagen über die für Leerstellen charakteristischen Sprungfrequenzen und Aktivierungsenergien ableiten (z. B. NowB 75).

Im Gegensatz zu kubischen ist in hexagonalen Gittern die Diffusion in Einkristallen richtungsabhängig. Zur Beschreibung der Selbstdiffusion benötigt man sowohl die Frequenz $\nu_{\perp}$ eines elementaren Diffusionsschrittes senkrecht zur c-Achse, der die Leerstellen in derselben Basalebene beläßt, als auch die Frequenz $\nu_{\parallel}$ eines elementaren Diffusionsschrittes, der aus der jeweiligen Basalebene hinausführt. Für die Temperaturabhängigkeit gilt die Arrheniusgleichung:

$$\nu_{\perp} = \nu_{\perp}^{\circ} e^{-\frac{E_{\perp}^M}{kT}}$$

$$\nu_{\parallel} = \nu_{\parallel}^{\circ} e^{-\frac{E_{\parallel}^M}{kT}}$$

E^M wird als Aktivierungsenergie für Leerstellenwanderung bezeichnet; v^0 stellt die Frequenz der thermischen Eigenschwingungen der Gitteratome in der entsprechenden Richtung dar. Durch eine Mittelung der von Schumacher (Schu 70) angegebenen Diffusionsdaten zusammen mit neueren Ergebnissen (SimV 74) erhält man für Zink:

$$E_{\parallel}^M = 0,45 \text{ eV}$$

$$E_{\perp}^M - E_{\parallel}^M = 0,1 \text{ eV}$$

Die höhere Aktivierungsenergie für einen Sprung innerhalb derselben Basalebene in Zink ist eine Folge der dichteren Packung der Gitteratome in dieser Ebene. Ein Atom, das in eine benachbarte Leerstelle springt, muß zwischen zwei seiner nächsten Nachbarn hindurch und den entsprechend höheren Potentialwall überwinden.

Eine Abschätzung der Eigenfrequenzen $v_{\parallel}^0$ und $v_{\perp}^0$ aus Diffusionsdaten setzt eine Kenntnis der Leerstellenkonzentration voraus. Bei Verwendung des von Svechkarev und Solynshkin angegebenen Werts für die Formierungsentropie thermisch erzeugter Leerstellen (SveS 71) ergibt sich:

$$v_{\parallel}^0 = 1,7 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$$

$$v_{\perp}^0 = 3,2 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$$

Die Beweglichkeit von Zink-Atomen auf Zwischengitterplätzen in Zink läßt sich aus Erholungskurven der elektrischen Leitfähigkeit bestrahlter Proben abschätzen. Man erhält für die Aktivierungsenergie einen Wert von etwa 0,2 eV (Schu 70). Über die Richtungsabhängigkeit dieser Größe ist nichts bekannt. Der angegebene Wert entspricht vermutlich der geringst möglichen Energie.

Im Gegensatz zu allen bisher zitierten Experimenten zur Diffusion von Gitterdefekten sind Untersuchungen mit Hilfe rückstoßimplantierter Sondenkerne lediglich auf lokale Änderungen der Gitterstruktur in der Umgebung der Sonde empfindlich. Es ist deshalb notwendig, die Auswirkungen von Diffusionsprozessen auf den Bereich der Kollisionskaskade zu betrachten. Im einzelnen lassen sich folgende Effekte unterscheiden:

- a.) Diffusion von Defekten aus der Umgebung des Sondenatoms in das ungestörte Außengebiet. Betrachtet man das defektfreie Gitter außerhalb des Bereichs der Kaskade näherungsweise als Senke mit großem Aufnahmevermögen, so gilt für die Konzentration p der Defekte in einer definierten Umgebung des Sondenatoms

$$\frac{dp}{dt} = -\lambda p$$

Lösung ist wie für alle Diffusionsprozesse 1. Ordnung eine exponentielle Abnahme der Defektkonzentration:

$$p = p_0 e^{-\lambda t} \quad (12)$$

- b.) Rekombination eng benachbarter Frenkel-Paare. Auch dieser Vorgang ist von 1. Ordnung und zeigt die entsprechende Zeitabhängigkeit.
- c.) Rekombination beliebiger Zwischengitteratome mit Leerstellen. Setzt man in dem betrachteten Volumen gleiche Anfangskonzentrationen beider Defekttypen voraus, so erhält man die für einen Prozeß 2. Ordnung

charakteristische Differentialgleichung

$$\frac{dp}{dt} = - \lambda p^2$$

mit der Lösung

$$p = p_0 \frac{1}{1 + \lambda p_0 t} \quad (13)$$

d.) Bildung von Zwischengitteratom- und Leerstellenclustern in Bereichen mit überwiegendem Anteil eines der beiden Defekttypen. Zur Berechnung des zeitlichen Ablaufs sind in diesem Fall Differentialgleichungen höherer Ordnung notwendig, deren Struktur von der Art der betrachteten Cluster abhängt. Es ist im allgemeinen nicht möglich, eine einfache, analytische Lösung für die Zeitabhängigkeit der entsprechenden Konzentrationen anzugeben.

In den Gleichungen (12) und (13) stellt λ ein Maß für die Beweglichkeit der jeweiligen Defekte dar. Für die Temperaturabhängigkeit gilt deshalb:

$$\lambda = \lambda_0 e^{-\frac{E^A}{kT}} \quad (14)$$

Dabei ist E^A die Aktivierungsenergie für Sprünge des Defekttyps, dessen Diffusion die Änderung der Fehlstellenkonzentration insgesamt bewirkt.

Eine genaue Untersuchung der Zeit- und Temperaturabhängigkeit von Störungen der Hyperfeinwechselwirkung nach Kernreaktionen sollte somit Aussagen erlauben sowohl über die Aktivierungsenergie der beteiligten Defekte als auch über die

Art des Erholungsprozesses in der Umgebung des Sondenatoms. Die bisher entwickelten Vorstellungen gelten allerdings nur dann, wenn die Sonde - wie bei der Messung am $9/2^+$ -Zustand von ^{67}Zn in Zink - kein Fremdatom darstellt.

Nach den vorausgegangenen Überlegungen zur Diffusion von Punktdefekten ist zumindest bei bestimmten Temperaturen des Targets damit zu rechnen, daß sich die mittlere Konzentration p der Defekte innerhalb einer gewissen Umgebung jedes Sondenatoms während der Lebensdauer des betrachteten isomeren Zustands ändert. Der Mittelungsprozeß muß dabei alle im Laufe einer Messung beobachteten Sondenatome erfassen. Im vorliegenden Fall wird er offenbar durch die Einführung einer Verteilung der Wechselwirkungsfrequenzen entsprechend Gleichung (6) gut wiedergegeben. Dabei erscheint es plausibel, Proportionalität zwischen der mittleren Defektkonzentration p und der Streuung δ der Frequenzverteilung anzunehmen. Die Zeitabhängigkeit von δ wird also von der Art des Erholungsprozesses in der Kaskade abhängen. Um zu prüfen, ob es trotz der relativ kurzen Lebensdauer des $9/2^+$ -Zustands in ^{67}Zn möglich ist, eine Zeitabhängigkeit der Streuung δ festzustellen, die einem bestimmten Erholungsprozeß zugeordnet werden kann, wurde das folgende Verfahren entwickelt.

Wird zur Anpassung an die Zeitspektren eine Verteilungsfunktion mit festem δ (6) verwendet, so stellen die dabei erhaltenen Ergebnisse δ_f eine Mittelung der über den Anpassungsbereich beobachteten Werte der Streuung der Frequenzverteilung dar:

$$\delta_f = \overline{\delta(100 \text{ ns} - 1 \mu\text{s})}$$

$$\delta_f \approx \delta(t_1)$$

t_1 sei ein geeignet gewählter Zeitpunkt aus dem Anpassungsintervall.

Es werde zunächst angenommen, daß die Erholung im Bereich der Kaskade überwiegend auf Vorgängen 1. Ordnung beruhe. Dann gilt wegen Gleichung (12):

$$\delta = \delta_0 e^{-\lambda t}$$

$$\lambda = \frac{\ln(\delta_0/\delta_f)}{t_1}$$

In Abb. 11A wurden die mit Hilfe der Ergebnisse aus Tab. 2 berechneten Werte für λ über der reziproken Temperatur aufgetragen. Wegen Gleichung (14) sollten die eingezeichneten Punkte in der logarithmischen Darstellung auf einer Geraden liegen, für deren Steigung gilt:

$$\frac{d(\ln \lambda)}{d(1/T)} = - \frac{E^A}{k}$$

Diese Größe ist unabhängig von der Wahl des Zeitpunktes t_1 und, wie sich gezeigt hat, auch weitgehend unabhängig von der auf die Temperatur $T=0$ extrapolierten Streuung δ_0 . Der eingezeichnete Fit ergibt

$$E^A = 0,05 \pm 0,015 \text{ eV}$$

Um zu untersuchen, wie empfindlich die Meßergebnisse auf den Typ des angenommenen Diffusionsprozesses sind, wurden entsprechende Überlegungen für den Fall angestellt, daß die Erholung des Gitters in der Umgebung des Sonden-kerns überwiegend auf einen Vorgang 2. Ordnung zurückzuführen ist. Aus

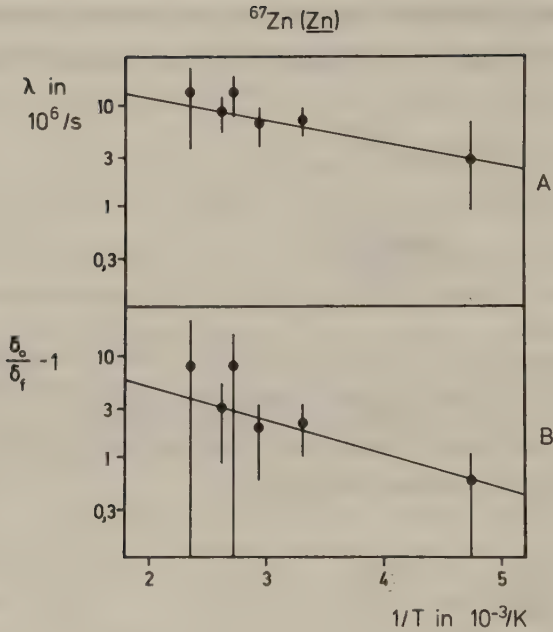


Abb. 11 Arrheniusplots der aus den Meßergebnissen an ^{67}Zn für einen Erholungsprozeß 1. (A) und 2. (B) Ordnung berechneten Beweglichkeiten. Die eingezeichneten Fehler enthalten nur die statistische Unsicherheit der Messung.

Gleichung (13) folgt:

$$\delta = \delta_o \frac{1}{1 + \lambda p_o t}$$

$$\frac{\delta_o}{\delta_f} - 1 = p_o t_1 \lambda$$

Abb. 11B zeigt eine logarithmische Auftragung der experimentellen Ergebnisse für $\delta_o/\delta_f - 1$ über $1/T$. Nach Gleichung (14) sollten die Werte auf einer Geraden mit der Steigung

$$\frac{d[\ln(\delta_o/\delta_f - 1)]}{d(1/T)} = - \frac{E^A}{k}$$

liegen. Der entsprechende Fit ergibt

$$E^A = 0,07 \pm 0,02 \text{ eV}$$

Ein Vergleich der Abb. 11A und B und der beiden Fitergebnisse zeigt, daß es offenbar möglich ist, Aussagen über Aktivierungsenergien zu machen, auch wenn die Meßgenauigkeit nicht ausreicht, um die Ordnung des Diffusionsprozesses zu bestimmen und damit der Frequenzstreuung δ eine bestimmte Zeitabhängigkeit zuzuordnen. Die Größe der angegebenen Aktivierungsenergie deutet darauf hin, daß in Zink die Erholung einer Defektkaskade entweder durch freie Wanderung von Zwischengitteratomen oder durch Rekombination enger Frenkel-Paare bestimmt wird (Schu 70). Der Einfluß von Leerstellenwanderung scheint hingegen gering zu sein.

Die große Ähnlichkeit des Zink- und des Cadmium-Gitters legt einen Vergleich der vorliegenden Meßergebnisse mit einer analogen Untersuchung von Bleck und Mitarbeitern an Cadmium nahe (BleB 72, But 72). Abb. 12 zeigt die Quadrupolwechselwirkung des $^{111}\text{Cd}-5/2^+$ -Zustands in Cadmium bei verschiedenen Temperaturen. Zur Anpassung an die Zeitspektren wurden bei tiefen Temperaturen gaußförmige, bei höheren Temperaturen lorentzförmige Verteilungen der Wechselwirkungsfrequenz verwendet. Eine Lorentzverteilung bewirkt im Vergleich zur Gaußverteilung eine anfänglich stärkere Dämpfung der Zeitspektren.

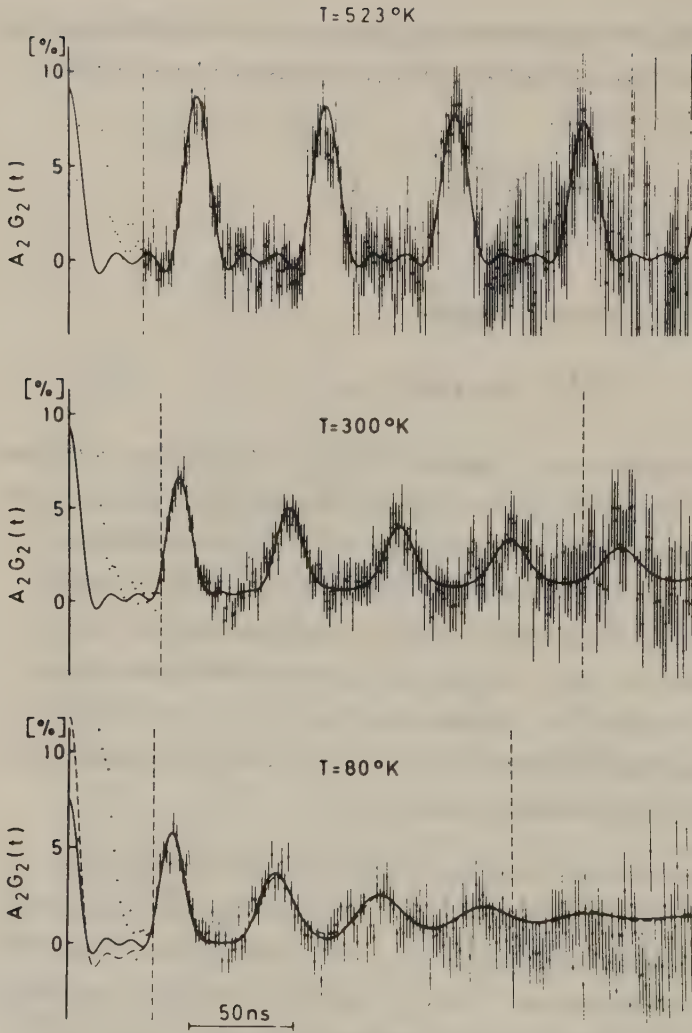


Abb. 12 Quadrupolwechselwirkung des $^{111}\text{Cd}-5/2^{+}$ -Zustands in Cadmium nach der Reaktion $^{110}\text{Cd}(d,p)^{111}\text{Cd}$ (BléB 72).

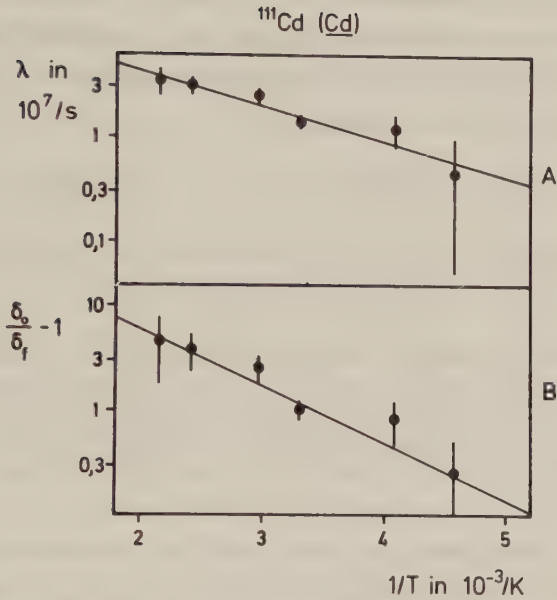


Abb. 13 Arrheniusplots für einen Erholungsprozeß 1. (A) und 2. (B) Ordnung in Cadmium nach Meßergebnissen von Bleck und Mitarbeitern (BleB 72).

Dies zeigt beispielsweise die in Abb. 12 gestrichelt eingezeichnete Kurve. Die Notwendigkeit einer derartigen Anpassung verschiedener Verteilungsfunktionen ist zumindest ein starker Hinweis für das Auftreten einer zeitabhängigen Dämpfung bei höheren Temperaturen, wie es von den diskutierten Diffusionsmodellen gefordert wird. Zur Untersuchung des Typs der Zeitabhängigkeit und des Temperaturverhaltens wurden die Ergebnisse von Bleck und Mitarbeitern demselben Auswerteverfahren unterworfen, das zur Interpretation

der Messung an Zink verwendet wurde. Abb. 13 zeigt die Auftragung der aus den Meßergebnissen berechneten Beweglichkeiten der Gitterdefekte über der reziproken Temperatur. Für die Aktivierungsenergie erhält man bei der Annahme von Prozessen 1. bzw. 2. Ordnung:

$$E^A = 0,07 \pm 0,01 \text{ eV} \quad (1. \text{ Ordnung})$$

$$E^A = 0,11 \pm 0,02 \text{ eV} \quad (2. \text{ Ordnung})$$

Die Werte stimmen im Rahmen der erwarteten Vergleichbarkeit mit den für das Zink ermittelten überein. Aussagen über die Kinematik des vorherrschenden Erholungsprozesses scheitern allerdings auch in diesem Fall an der Genauigkeit der Messung.

Bei der Verwendung langlebiger Isomere sollte es jedoch möglich sein, aus dem Verlauf der Zeitspektren unmittelbare Schlüsse zu ziehen und damit die Vorteile dieser Methode gegenüber zeitlich integralen Messungen voll zu nutzen.

5.3. Diffusion in der Umgebung eines Fremdatoms

Stellt ein zur Untersuchung von Bestrahlungseffekten verwendetes Sondenatom ein Fremdatom dar, so treten im allgemeinen Wechselwirkungen zwischen ihm und den in seiner Umgebung erzeugten Punktdefekten auf. Man führt diese Kräfte sowohl auf eine Verzerrung des Gitters durch unterschiedliche Radien von Fremd- und Wirtsgitteratom als auch auf Unterschiede der chemischen Wertigkeit zurück. Letzteres führt in Metallen zu einer Veränderung der Konzentration der Leitungselektronen in der Nähe des Fremdatoms. Da in der Umgebung einer Leerstelle die Konzentration der Leitungselektronen verringert

ist, wird es energetisch günstig sein, ein Fremdatom dort zu plazieren. Auf dieser Basis ausgeführte Berechnungen sind allerdings noch zu ungenau, um mehr als qualitative Aussagen über Größe und Vorzeichen der zu erwartenden Bindungsenergien zu erlauben (MarR 71, YamD 73, YamT 73, Mas 73). Bessere Resultate erhält man durch die experimentelle Untersuchung der Diffusion von Fremdatomen in Metallen. Liegt ein Leerstellenmechanismus vor, so kann man aus einem Vergleich der Aktivierungsenergie für Selbst- und Fremddiffusion Rückschlüsse auf die Wechselwirkung zwischen Leerstelle und Fremdatom ziehen. Es bereitet allerdings Schwierigkeiten, hierbei die Einflüsse der unterschiedlichen Aktivierungsenergie für den Sprung eines Wirtsgitter- und Fremdatoms von den Auswirkungen der Bindungsenergie zu unterscheiden (MarR 71). Untersuchungen der Fremdatomdiffusion liegen für eine Reihe von Metallen in Zink vor (Gha 64, Bath 66, Bat 67). Das System Germanium in Zink wurde jedoch bisher nicht untersucht. Man kann allerdings eine von Sprusil und Valvoda entwickelte Methode zum Vergleich der Bindungsenergie in verschiedenen Systemen anwenden (SprV 67, SprV 68). Hierzu wird Proportionalität zwischen der Steigung der Schmelztemperaturkurve im Phasendiagramm der entsprechenden Legierung bei verschwindender Fremdatomkonzentration einerseits und der Leerstellen-Fremdatom-Bindungsenergie andererseits angenommen. Man erhält mit Hilfe der Phasendiagramme von Hansen (Han 58) in Übereinstimmung mit der Wertigkeitsdifferenz ein attraktives Potential für Germanium in Zink mit einer Bindungsenergie in der Größenordnung von 0,1 eV. Wie aus Diffusionsmessungen an Einkristallen hervorgeht, ist die günstigste relative Lage von Fremdatom und Leerstelle die nächster Nachbarn in derselben Basalebene (Bat 67).

Die Erholung einer Defektkaskade in Zink wird also in der Nähe eines Germanium-Fremdatoms grundsätzlich anders verlaufen, als es für ein ungestörtes Gitter im letzten Abschnitt diskutiert wurde. Innerhalb eines gewissen

● Wirtsgitteratom

○ Leerstelle

□ Fremdatom

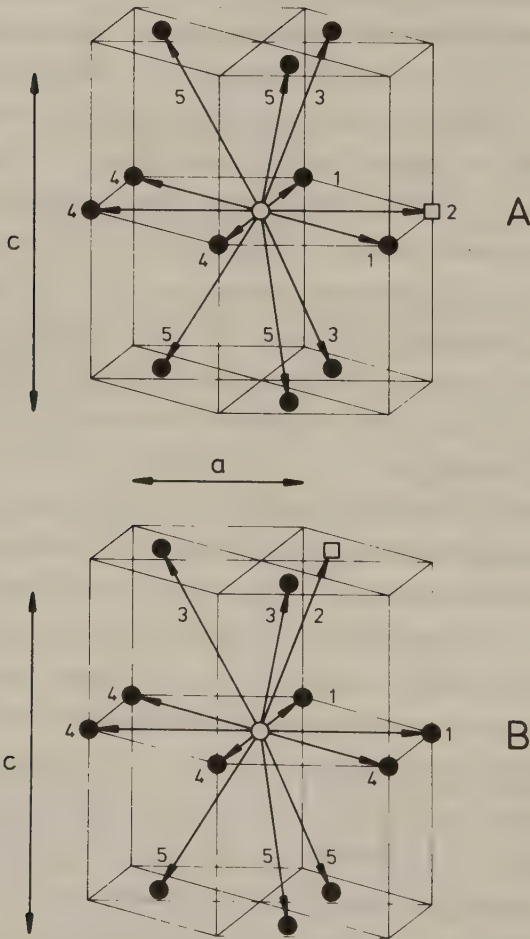


Abb. 14 Elementare Diffusionsschritte einer Leerstelle nach dem Einfang an ein Fremdatom in hexagonalen Gittern

Volumens werden Diffusionsschritte in Richtung des Fremdatoms energetisch günstiger sein als die entsprechenden Sprünge in umgekehrter Richtung. Das führt zu einer erhöhten Wahrscheinlichkeit, Leerstellen in den nächsten Nachbarpositionen der Sondenatome zu finden und zur Stabilität der gebildeten Komplexe gegenüber Diffusionsprozessen (AbrG 74, HohA 75, ManV 73). Das Einfangen der Leerstellen kann sowohl unmittelbar nach der Ausbildung der Kaskade in Folge der hohen kinetischen Energie der Gitteratome in diesem Gebiet als auch zu einem späteren Zeitpunkt erfolgen.

Für den zwar speziellen, aber sicher häufigen Fall des Einfangs einer einzelnen Leerstelle zeigt Abb. 14 eine Zusammenstellung der nach dem Einfang möglichen elementaren Diffusionsschritte. Da zumindest zeitweilig auch Konfigurationen auftreten, in denen Leerstelle und Fremdatom übernächste Nachbarn bilden, wurde auch dieser Fall in die Überlegungen einbezogen. Tab. 3 gibt einen Überblick über die entsprechenden Sprungfrequenzen und Aktivierungsenergien. Dabei wurde zur Vereinfachung angenommen, daß Bindungskräfte auf höhere als übernächste Nachbarn zu vernachlässigen sind. Die numerische Abschätzung der Aktivierungsenergien soll dazu dienen, wahrscheinliche Sprünge von seltenen zu unterscheiden. Die Werte stützen sich auf die im letzten Abschnitt referierten Selbstdiffusionsmessungen und auf die obige Abschätzung der Bindungsenergie zwischen dem Germanium-Atom und der Leerstelle in einer nächsten Nachbarposition.

Die günstigsten Verhältnisse ergeben sich somit für Sprünge, in denen das Fremdatom seinen Platz mit der Leerstelle vertauscht. Das ist die Folge der entsprechenden, energetisch günstigen Sattelpunktskonfiguration, wenn sich das Fremdatom praktisch in der Mitte zwischen zwei Leerstellen befindet. Daneben spielen noch Sprünge eine Rolle, die die Leerstelle zwischen nächsten und übernächsten Nachbarpositionen wechseln lassen.

Erläuterung der in Tab. 3 verwendeten Bezeichnungen

F	Faktor zur Berücksichtigung verschiedener Sprungmöglichkeiten
E^M	Aktivierungsenergie für den Sprung einer Leerstelle ohne Anwesenheit eines Fremdatoms
E^F	Aktivierungsenergie für den Platzwechsel von Leerstelle und Fremdatom
E^B	Leerstellen-Fremdatom-Bindungsenergie für nächste (A) und übernächste (B) Nachbarpositionen
ΔE^B	$= E_A^B - E_B^B$

Die Indices entsprechen allgemein Bewegungen parallel ($\parallel$) und senkrecht ($\perp$) zur c-Achse.

Mit II bezeichnete Diffusionsschritte führen zu einer Entfernung von Leerstelle und Fremdatom auf höhere als übernächste Nachbarpositionen und damit in der betrachteten Näherung zum Aufbruch der Bindung. Die mit I bezeichneten Diffusionsschritte bewirken hingegen nur eine Änderung der relativen Position.

Ausgangskonfiguration nach Abb. 14A			
Bezeichnung		F	Aktivierungsenergie
I	A1	2	E_L^M 0,55 eV
	A2	1	E_L^F $\approx 0,55$ eV
	A3	2	$E_{II}^M + \Delta E^B$ $\approx 0,45$ eV
II	A4	3	$E_L^M + E_A^B$ $\approx 0,7$ eV
	A5	4	$E_{II}^M + E_A^B$ $\approx 0,6$ eV
Ausgangskonfiguration nach Abb. 14B			
Bezeichnung		F	Aktivierungsenergie
I	B1	2	E_L^M 0,55 eV
	B2	1	E_{II}^F $\approx 0,45$ eV
	B3	2	$E_{II}^M - \Delta E^B$ $\approx 0,45$ eV
II	B4	4	$E_L^M + E_B^B$ $\approx 0,65$ eV
	B5	3	$E_{II}^M + E_B^B$ $\approx 0,55$ eV

Tab. 3 Abschätzung der Aktivierungsenergien für die in Abb. 14 beschriebenen Diffusionsprozesse

Eine Trennung des gebildeten Komplexes findet mit großer Wahrscheinlichkeit über Sprünge in Richtung der c-Achse statt, wobei die Leerstelle möglicherweise kurzzeitig eine Position als übernächster Nachbar des Fremdatoms einnimmt. Die insgesamt notwendige Aktivierungsenergie entspricht in jedem Fall der Summe aus der Wanderungsenergie im ungestörten Gitter parallel zur c-Achse und der Bindungsenergie einer nächsten Nachbarkonfiguration.

5.4. Einfluß auf die Ausrichtung der Sondenkerne

Ausgehend von den besprochenen Diffusionsprozessen soll ein mikroskopisches Modell für die Störung der Hyperfeinwechselwirkung eines Fremdatomkerns durch die bei seiner Abbremsung in einem hexagonalen Metallgitter erzeugten Defekte entwickelt werden. Um das beobachtete, unterschiedliche Verhalten nach der Implantation eines Fremd- und Wirtsgitteratoms zu erklären, wird dabei insbesondere der Einfluß der Wechselwirkung zwischen Fremdatomen und Punktdefekten zu berücksichtigen sein.

Die übersichtlichsten Verhältnisse werden für Messungen bei tiefen Temperaturen erwartet, da alle thermischen Diffusionsvorgänge entsprechend verlangsamt oder gänzlich unterbunden sind. In diesem Temperaturbereich beobachtet man mit Hilfe der langlebigen ^{69}Ge -Sonde in Zink nur eine vergleichsweise geringe Modulation der Zeitspektren, die zudem innerhalb der ersten μs nach der Anregung völlig verschwindet. Eine Erklärung dieses Verhaltens auf Grund einer dynamischen Relaxation des Alignments durch fluktuierende Felder scheidet aus. Denn einerseits sollten nach Erreichen des thermischen Gleichgewichts im Kaskadengebiet bei 12 K keine ausreichend schnellen Fluktuationen möglich sein. Andererseits können alle vorher ablaufenden Prozesse

nicht unmittelbar eine temperaturabhängige Änderung der Kernausrichtung bewirken, da die für diese Vorgänge charakteristischen Energien die thermische bei weitem übersteigen.

Die Interpretation der Messungen durch ein statisches Modell muß davon ausgehen, daß die Art der Wechselwirkung der Sondenkerne in zwei Kategorien eingeteilt werden kann. Ein Typ läßt sich durch die beobachtete gaußförmige Verteilung der Quadrupolkopplungskonstanten beschreiben. Der entsprechende Bruchteil der Kerne kommt offenbar in einer im Mittel nur leicht gestörten Umgebung zur Ruhe. Man erwartet derartige Feldgradienten, wenn sich statistisch verteilte Gitterdefekte in einem größeren Abstand der Sondenkerne befinden. Der zweite, im vorliegenden Fall etwa 70 % ausmachende Bruchteil der Sondenkerne trägt während des auswertbaren Teils der Lebensdauer nicht zur Modulation der Zeitspektren bei. Da ausgeschlossen werden kann, daß sich diese Kerne in praktisch feldfreien Gebieten befinden, wird entweder im Experiment die zugehörige Wechselwirkungsfrequenz nicht aufgelöst oder es muß angenommen werden, daß eine Reihe verschiedener, eventuell nicht axial-symmetrischer Feldgradienten auftritt, deren Beträge sich erheblich von dem Wert im ungestörten Gitter unterscheiden. Die Mittelung über die beobachteten Kerne bewirkt dann ein Abklingen des Alignments mit einer Zeitkonstanten, die etwa dem Reziproken der beigemischten Wechselwirkungsfrequenzen entspricht.

Es liegt nahe, die Existenz zwei deutlich unterscheidbarer Typen der Wechselwirkung auf ein definiertes Instabilitätsvolumen für Leerstellen um Germanium-Fremdatome zurückzuführen. Wird während der Ausbildung der Kollisionskaskade zufällig eine Leerstelle innerhalb dieses Volumens erzeugt, so findet ein spontaner Einfangprozeß statt, noch bevor sich das umgebende Gitter im thermischen Gleichgewicht befindet und damit in dem bisher betrachteten

Temperaturbereich Leerstellenwanderung nicht mehr möglich ist. Die nach dem Einfang am Kernort des Sondenatoms resultierenden Feldgradienten weichen stark von dem des ungestörten Gitters ab und besitzen im allgemeinen keine axiale Symmetrie.

Wie aus den Abb. 5 und 8 entnommen werden kann, treten bei einer Erhöhung der Temperatur des Zink-Wirtsgitters zunächst keine größeren Veränderungen der Meßergebnisse auf. Die von Bartsch und Mitarbeitern am System ^{67}Ge in Zink gemessene leichte Abnahme der Modulationsamplitude (Abb. 9) läßt sich wegen der kurzen Lebensdauer des verwendeten Zustands nicht eindeutig einem Mechanismus zuordnen.

Erst eine Erhöhung der Temperatur auf Werte über 400 K bewirkt einen drastischen Anstieg der beobachteten Modulationsamplitude. Auf Grund der vorausgegangenen Überlegungen muß dieses Verhalten mit dem Aufbruch der bis zu dieser Temperatur stabilen Leerstellen-Fremdatom-Bindung in Zusammenhang gebracht werden. Zur genaueren Beschreibung dieses Vorgangs wird von der im letzten Abschnitt behandelten Diffusion von Leerstellen in der Nähe eines Fremdatoms ausgegangen. Es wurden die folgenden Vereinfachungen vorgenommen, um quantitative Aussagen zu ermöglichen:

Der Aufbruch eines Leerstellen-Fremdatom-Komplexes soll nur durch eine einzige Eigenfrequenz ν_1^0 und Aktivierungsenergie E_1 beschrieben werden. Das erscheint deshalb gerechtfertigt, da von mehreren Möglichkeiten, eine Trennung herbeizuführen, immer eine energetisch bevorzugt ist und damit überwiegt. Mit der gleichen Argumentation kann man annehmen, daß sich auch Diffusionsschritte, die nicht zu einem Aufbruch führen, durch eine Eigenfrequenz ν_2^0 und eine Aktivierungsenergie E_2 erfassen lassen. Die Wechselwirkung des Sondenkerns soll für die Dauer der Anwesenheit der Leerstelle

in erster Näherung durch einen betragsmäßig konstanten, axialsymmetrischen Feldgradienten beschrieben werden, dessen Richtung sich auf Grund der zuletzt genannten Diffusionsschritte mit der Korrelationszeit

$$\tau_c = \frac{e \frac{E_2}{kT}}{v_2^0}$$

in statistischer Weise ändert. Die Wechselwirkung werde zu dem Zeitpunkt abgeschaltet, wenn es zum Aufbruch der Leerstellen-Fremdatom-Bindung kommt. Das ist im Mittel nach einer Zeit

$$\tau = \frac{e \frac{E_1}{kT}}{v_1^0}$$

Danach sei am Kernort des Sondenatoms nur noch der im ungestörten Gitter beobachtete Feldgradient wirksam.

Ist die mittlere Verweilzeit τ der Leerstelle bei dem Fremdatom klein im Vergleich zur Periode der ungestörten Quadrupolwechselwirkung, so macht sich nur ein zeitlich integraler Einfluß der Störung auf die Modulationsamplitude bemerkbar. Das scheint für Germanium in Zink bei Temperaturen über 350 K der Fall zu sein, da die Spektren während des Beobachtungszeitraums von etwa 150 ns bis 3 μ s nach der Anregung keinerlei Veränderungen anzeigen. Die beobachtete Modulationsamplitude sollte sich dann durch eine von Bosch und Spehl (BosS 73) für statistisch fluktuierende Feldgradienten

mit beliebiger Korrelationszeit abgeleitete Beziehung beschreiben lassen:

$$A_{22}^{\text{eff}} = A_{22} \frac{\sum_n \frac{s_{kn} (1 + \tau/\tau_c)}{(1 + \tau/\tau_c)^2 + (n\omega_s \tau)^2}}{1 - \frac{\tau}{\tau_c} \sum_n \frac{s_{kn} (1 + \tau/\tau_c)}{(1 + \tau/\tau_c)^2 + (n\omega_s \tau)^2}} \quad (15)$$

ω_s charakterisiert die Stärke der Quadrupolwechselwirkung des Sondenkerns im Feld der Leerstelle.

Abb. 15 zeigt einen Vergleich der Messung an ^{69}Ge mit den für einen geeigneten Parametersatz nach Gleichung (15) erwarteten Amplituden. Es wurde angenommen, daß 100 % der Sondenkerne eine Bindung mit Leerstellen eingehen.

Wie sich zeigen läßt, ist der Verlauf der eingezeichneten Kurve - abgesehen von der Normierungskonstanten A_{22} - weitgehend von der speziellen Wahl der Parameter unabhängig, solange der Wert des Ausdrucks

$$\frac{\omega_s^2}{v_1^0} e^{\frac{E_1 + E_2}{kT^*}} \frac{1}{v_2^0}$$

konstant gehalten wird. Für T^* ist die Temperatur einzusetzen, bei der die Modulationsamplitude etwa auf die Hälfte ihres Maximalwerts abgesunken ist. Die Abhängigkeit von der Summe $E_1 + E_2$ läßt sich derart verstehen, daß eine Verkürzung der Korrelationszeit τ_c durch eine entsprechende Verlängerung

der gesamten Wechselwirkungsdauer τ ausgeglichen werden kann.

Um eine Aussage über die Aktivierungsenergien zu erhalten, sind somit Annahmen sowohl über die Schwingungsfrequenzen der beteiligten Atome als auch über die Stärke der Wechselwirkung des angeregten Kerns im Feld der Leerstelle notwendig. Eine Abschätzung der Frequenzen ν_1^0 und ν_2^0 ist auf Grund der in den letzten Abschnitten beschriebenen Diffusionsmessungen möglich. Es soll angenommen werden, daß sich die Eigenfrequenzen für Zink-Atome im ungestörten Gitter und in der Nähe einer Störstelle nicht wesentlich untereinander und von der Frequenz der etwa gleich schweren Germanium-Fremdatome unterscheiden. Mit Hilfe der Multiplikatoren aus Tab. 3 erhält man:

$$\nu_1^0 = 6 \cdot 10^{14} \text{ Hz} \qquad \nu_2^0 = 3 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$$

Schwieriger erscheint eine Abschätzung des Werts der Wechselwirkungsfrequenz ω_s . Eine direkte Beobachtung dieser Art der Wechselwirkung gelang bisher vermutlich nur in den kubischen Metallen Silber und Palladium (BehS 72, BerH 74). Es ist jedoch möglich, die Größe ω_s näherungsweise zu berechnen, indem die Leerstelle im zweiwertigen Zink als zweifach negative Punktladung im Abstand eines nächsten Nachbarn betrachtet wird. Der Feldgradient dieser Ladung kann dann mit dem für ein Punktgitter berechneten Wert (RoeK 74) verglichen werden. Man erhält so das Verhältnis der Feldgradienten der einzelnen Leerstelle und des ungestörten Gitters unter der vereinfachenden Voraussetzung, daß sowohl der relative Beitrag der Leitungselektronen als auch der der eigenen Hülle in beiden Fällen vergleichbar ist. Vernachlässigt man für die Dauer der Anwesenheit der Leerstelle den Einfluß des Gitters, so ergibt sich $\omega_s = 3,1 \omega_0$. Ausgehend von diesem Ergebnis läßt sich der beobachtete

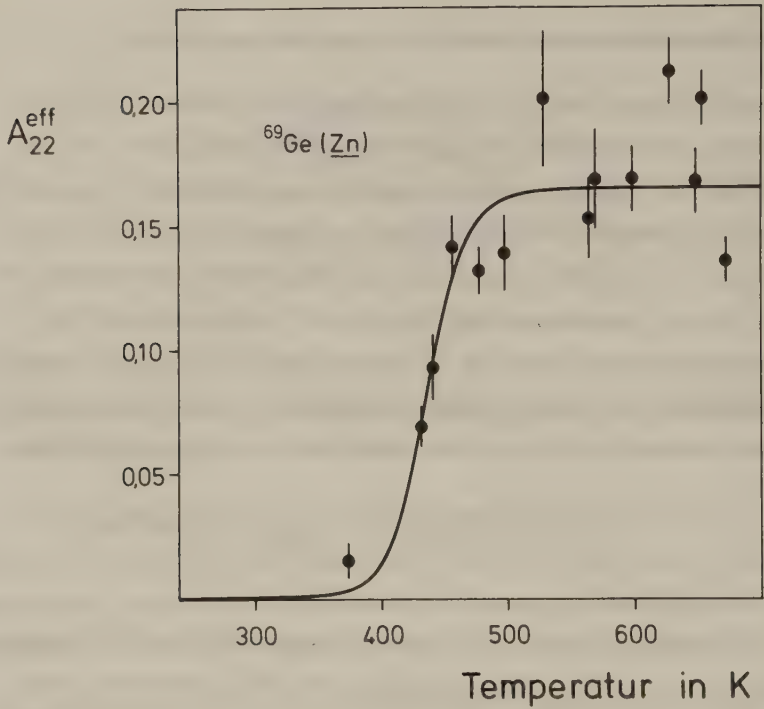


Abb. 15 Anpassung der nach Gleichung (15) erwarteten Temperaturabhängigkeit der Modulationsamplitude an die experimentellen Werte

(Parameter: $A_{22} = 0,166$; $E_1 = 0,6\text{eV}$; $E_2 = 0,5\text{eV}$; $\omega_s = 70 \text{ Mr/s}$;
 $\nu_1^0 = 6 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$; $\nu_2^0 = 3 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$)

Temperaturverlauf der Modulationsamplitude mit einem Wert von 1,1 eV für die Summe der Aktivierungsenergien $E_1 + E_2$ in der dargestellten Weise erklären. Ein Vergleich mit Tab. 3 zeigt eine erstaunlich gute Übereinstimmung mit den erwarteten Werten.

6. Schlußbemerkung

Das beschriebene Modell zur Diffusion von Leerstellen in der Mikroumgebung eines Fremdatoms ist in der Lage, den Einfluß von Strahlenschäden auf die Untersuchung der Quadrupolwechselwirkung von ^{69}Ge in Zink in quantitativer Weise zu erklären. Insbesondere können die Unterschiede zu der Messung an ^{67}Zn in Zink als Folge einer Bindung zwischen Germanium-Fremdatomen und Leerstellen im Zink-Gitter verstanden werden. Wie eine kürzlich von Schatz und Mitarbeitern an ^{69}Ge in Kupfer durchgeführte Messung der Temperaturabhängigkeit der Modulationsamplitude bei magnetischer Wechselwirkung zeigt, ist offenbar eine Ausdehnung dieser Überlegungen auf kubische Metalle möglich (SchaR 75).

Ein Ziel weiterer Untersuchungen wird es vor allem sein, durch systematische Variation der Sondenatome und Wirtsgitter den Einfluß der einzelnen Parameter - wie Aktivierungsenergien und Wechselwirkungsstärken - experimentell zu trennen. Dabei muß von Fall zu Fall geprüft werden, inwieweit die besprochenen, einschränkenden Vereinfachungen eine Anwendung der entwickelten Modellvorstellungen erlauben.

Literaturverzeichnis

- (AbrG 74) C. Abromeit and H. Gabriel
Proceedings of the International Conference on Hyperfine
Interactions, Uppsala, Sweden 1974, S. 48
- (BarL 75) W. Bartsch, W. Leitz, H.-E. Mahnke, W. Semmler, R. Sielemann
und T. Wichert
Verhandlungen DPG (VI) 10(1975)505
- (Bat 67) A. P. Batra
Phys. Rev. 159(1967)487
- (BatH 66) A. P. Batra and H. B. Huntington
Phys. Rev. 145(1966)542
- (Bee 66) J. R. Beeler, Jr.
Phys. Rev. 150(1966)470
- (BehS 72) M. Behar and R. M. Steffen
Phys. Rev. Lett. 29(1972)116
- (Ber 75) H. Bernas
Physica Scripta 11(1975)167
- (BerC 70) H. Bertschat, J. Christiansen, H.-E. Mahnke, E. Recknagel,
G. Schatz, R. Sielemann and W. Witthuhn
Phys. Rev. Lett. 25(1970)102
- (BerH 74) H. Bertschat, H. Haas, F. Pleiter, E. Recknagel, E. Schlodder
and B. Spellmeyer
Proceedings of the International Conference on Hyperfine
Interactions, Uppsala, Sweden 1974, S. 40
- (BerL 73) H. Bertschat, U. Leithäuser, K. H. Maier, E. Recknagel
and B. Spellmeyer
Nucl. Phys. A215(1973)486

- (BerR 74) H. Bertschat, E. Recknagel and B. Spellmeyer
Phys. Rev. Lett. 32(1974)18
- (BleB 72) J. Bleck, R. Butt, H. Haas, W. Ribbe and W. Zeitz
Phys. Rev. Lett. 29(1972)1371
- (BosS 73) F. Bosch and H. Spehl
Internal Report der Fakultät für Physik der Universität
Freiburg (July 1973)
- (But 72) R. Butt
Diplomarbeit, Berlin 1972
- (ChrH 67) J. Christiansen, P. Hindennach, U. Morfeld, E. Recknagel,
D. Riegel and G. Weyer
Nucl. Phys. A99(1967)345
- (ChrM 70) J. Christiansen, H.-E. Mahnke, E. Recknagel, D. Riegel,
G. Schatz, G. Weyer and W. Witthuhn
Phys. Rev. C1(1970)613
- (CzjB 70) G. Czjzek and W. G. Berger
Phys. Rev. B1(1970)957
- (EhrS 67) D. von Ehrenstein and J. P. Schiffer
Phys. Rev. 164(1967)1374
- (ErgV 64) C. Erginsoy, G. H. Vineyard and A. Englert
Phys. Rev. 133(1964)A595
- (ErgV 65) C. Erginsoy, G. H. Vineyard and A. Shimizu
Phys. Rev. 139(1965)A118
- (FeiJ 69) F. D. Feiock and W. R. Johnson
Phys. Rev. 187(1969)39
- (FraS 65) H. Frauenfelder and R. M. Steffen
Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, North-Holland
Publishing Company, Amsterdam 1965, Vol. 2, S. 997

- (Gha 64) P. B. Ghatge
Phys. Rev. 133(1964)A1167
- (HaaL 73) H. Haas, W. Leitz, H.-E. Mahnke, W. Semmler, R. Sielemann
and T. Wichert
Phys. Rev. Lett. 30(1973)656
- (Han 58) M. Hansen
Constitution of Binary Alloys, Mc. Graw-Hill Book Company,
New York 1958
- (Heu 75) P. Heubes
Dissertation, Erlangen 1975
- (HeuH 74) P. Heubes, G. Hempel, H. Ingwersen, R. Keitel, W. Klinger
W. Loeffler and W. Witthuhn
Proceedings of the International Conference on Hyperfine
Interactions, Uppsala, Sweden 1974, S. 208
- (HohA 75) C. Hohenemser, A. Arends and H. de Waard
Phys. Rev. B11(1975)4522
- (JacH 70) C. G. Jacobs, Jr. and N. Hershkowitz
Phys. Rev. B1(1970)839
- (JaeR 69) E. Jaeschke, W. Reichardt, G. Ischenko, D. Frosch, B. Huber
and E. Rinsdorf
Nucl. Instr. Meth. 71(1969)29
- (JohK 74) H. G. Johann und R. Keitel
Jahresbericht 1973/74 des Physikalischen Instituts der
Universität Erlangen-Nürnberg, S. 361
- (Krö 70) D. Kröniger
Diplomarbeit, Erlangen 1970
- (Lei 65) G. Leibfried
Bestrahlungseffekte in Festkörpern, B. G. Teubner Verlags-
gesellschaft, Stuttgart 1965

- (Loe 72) W. Loeffler
Diplomarbeit, Erlangen 1972
- (Man 68) H.-E. Mahnke
Diplomarbeit, Berlin 1968
- (ManV 73) W. Mansel, G. Vogl and W. Koch
Phys. Rev. Lett. 31(1973)359
- (MarR 71) N. H. March and J. S. Rousseau
Cryst. Latt. Def. 2(1971)1
- (Mas 73) K. Masuda
Phys. Lett. 45A(1973)381
- (MauV 73) F. Maury, P. Vajda, A. Lucasson and P. Lucasson
Phys. Rev. B8(1973)5496 und 5506
- (NowB 75) A. S. Nowick and J. J. Burton
Diffusion in Solids, Academic Press, New York 1975
- (PreG 71) R. S. Preston and R. Gerlach
Phys. Rev. B3(1971)1519
- (RoeK 74) L. P. Roesch, R. Kulessa, F. Horber, H. P. Seiler and P. Marmier
Phys. Rev. B9(1974)4638
- (San 74) W. Sandner
Diplomarbeit, Erlangen 1974
- (Scha 69) G. Schatz
Diplomarbeit, Berlin 1969
- (SchaB 75) G. Schatz, R. Brenn and D. B. Fossan
Phys. Lett. 57B(1975)231
- (SchaR 75) G. Schatz, M. H. Rafailovich and G. D. Sprouse
Contributions to the International Meeting on Hyperfine
Interactions, Leuven, Belgium 1975, S. 126

- (Schu 70) D. Schumacher
Vacancies and Interstitials in Metals, North-Holland
Publishing Company, Amsterdam 1970, S. 889
- (Sig 74) P. Sigmund
Appl. Phys. Lett. 25(1974)169
- (SimV 74) J. P. Simon, P. Vostry, J. Hillairet and P. Vajda
Phys. Stat. Sol. (b) 64(1974)277
- (SprV 67) B. Sprusil and V. Valvoda
Acta Metal. 15(1967)1269
- (SprV 68) B. Sprusil and V. Valvoda
Scripta Metal. 2(1968)653
- (SveS 71) I. V. Svechkarev and D. D. Solynshkin
Fiz. Metal. Metalloved. 32(1971)164
- (Tho 69) M. W. Thompson
Defects and Radiation Damage in Metals, Cambridge
University Press 1969
- (Waa 75) H. de Waard
Physica Scripta 11(1975)157
- (Yam 67) T. Yamasaki
Nuclear Data Section A 3(1967)1
- (YamD 73) R. Yamamoto, M. Doyama and O. Takai
Phys. Lett. 43A(1973)247
- (YamT 73) R. Yamamoto, O. Takai and M. Doyama
Phys. Lett. 43A(1973)467

Herrn Prof. Dr. J. Christiansen, an dessen Institut diese Arbeit entstand, möchte ich für viele anregende Diskussionen und sein ständiges Interesse danken.

Mein besonderer Dank gilt außerdem den Herren Dr. H. Ingwersen, Dr. W. Klinger, W. Sandner, Dr. G. Schatz und Dr. W. Witthuhn für ihre Hilfe bei den Experimenten, zahlreiche Anregungen und viele Diskussionen, die wesentlich zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben.

Herzlich gedankt sei den Herren R. Böhm, E. Hammer, Dr. G. Hempel, P. Heubes und C. Schultheiß für ihre tatkräftige Unterstützung bei den Messungen; den Herren Dr. H. G. Johann und R. Keitel gilt mein Dank zusätzlich für die Erstellung der Auswerteprogramme.

Der Studienstiftung des deutschen Volkes möchte ich für die großzügige Unterstützung meiner Arbeit danken.

Lebenslauf

10.2.1949	Geburt in Düsseldorf Eltern: Dr. Anton Loeffler, Richter Ida Loeffler, geb. Höfflin
1955-1959	Volksschule in Düsseldorf
1959-1967	Max-Planck-Gymnasium in Düsseldorf
Juli 1967	Abitur
1967-1972	Physikstudium an der Universität Erlangen-Nürnberg
Okt. 1972	Diplomexamen mit der Arbeit "Der g-Faktor des ersten angeregten Zustands in ^{66}Ga "
Nov. 1972-April 1973	Wissenschaftlicher Angestellter am 1. Physikalischen Institut der Universität Erlangen-Nürnberg
Mai 1973-Dez. 1974	Promotionsstipendium der Studienstiftung des deutschen Volkes
seit Jan. 1975	Verwalter der Dienstgeschäfte eines wissenschaftlichen Assistenten am 1. Physikalischen Institut der Universi- tät Erlangen-Nürnberg

Offseidruckerei HOGL, 8520 Erlangen, Hauptstr. 109, Tel. 22990